



FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GmbH
Institut für Chemische Technologie

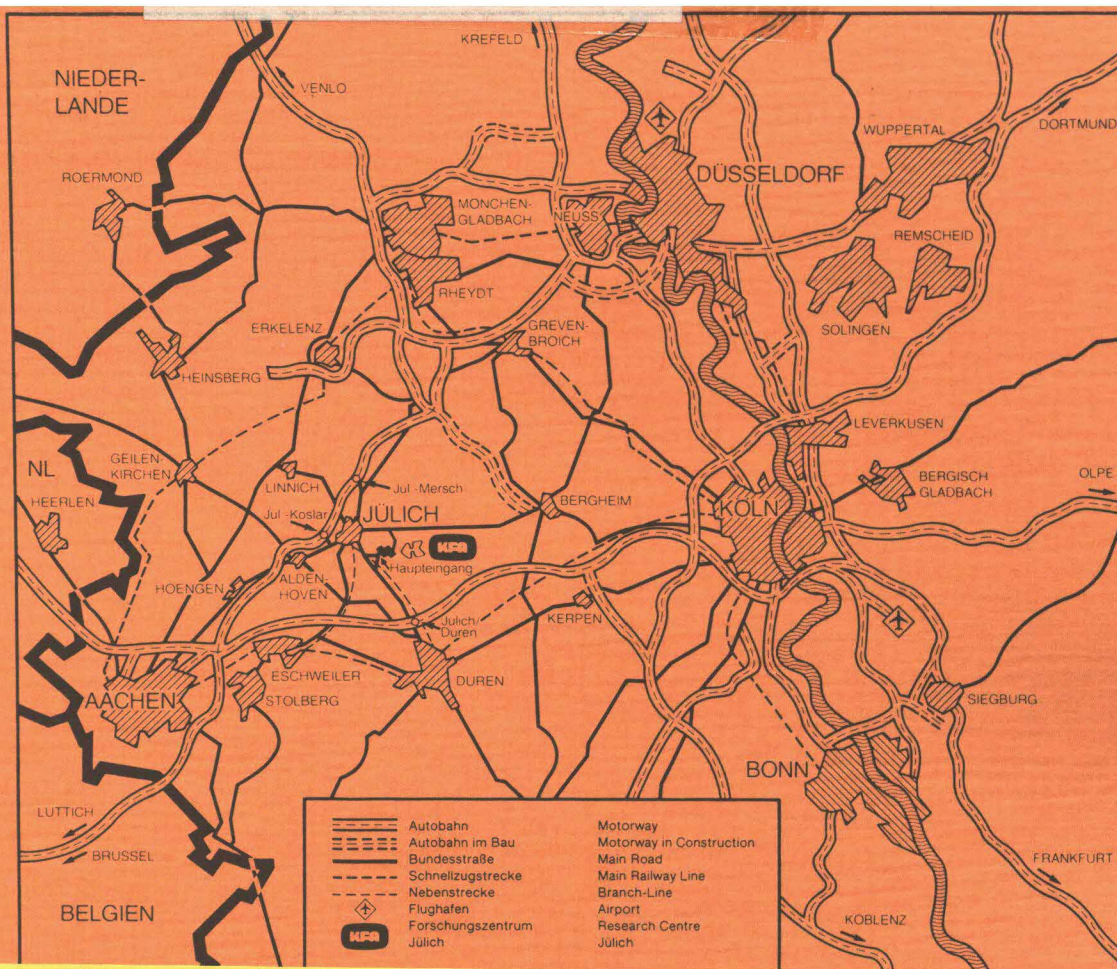
**Flammendurchschlag-Sicherheit von
Salzgrusschüttungen**

S. Deckardt

J. Töpfer

F. Suttrop

Jül-Spez-573
Juli 1990
ISSN 0343-7639



Forschungszentrum Jülich: Spezielle Berichte Nr. 573

Institut für Chemische Technologie Jül-Spez-573

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK · Forschungszentrum Jülich GmbH

Postfach 1913 · D-5170 Jülich (Bundesrepublik Deutschland)

Telefon: 02461/61-0 · Telefax: 02461/61-6103 · Telex: 833556-70 kfa d

Flammendurchschlag-Sicherheit von Salzgrusschüttungen

S. Deckardt*

J. Töpfer*

F. Suttrop*

Die Arbeit wurde im Rahmen des Vorhabens
MAW- und HTR-BE-Versuchseinlagerung
in Bohrlöchern (Projekt MHV)
durchgeführt

* Fachhochschule Aachen, Fachbereich 6

Das diesem Bericht zugrundeliegende Vorhaben wurde mit Mitteln des Bundesministers für Forschung und Technologie unter dem Förderkennzeichen KWA 5302 B6 gefördert. Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei den Autoren.

Im Forschungszentrum Jülich (KFA) wird seit 1983 an einem Vorhaben zur „Weiterentwicklung der Bohrlochtechnologie für die Endlagerung radioaktiver Abfälle im Salz am Beispiel von Feedklärschlamm, Brennelementhülsen, Strukturteilen und HTR-Brennelementen“ gearbeitet. Das Projekt wird vom Bundesminister für Forschung und Technologie unter dem Kennzeichen KWA 5302 B6 gefördert und trägt den Kurztitel **„MAW- und HTR-BE-Versuchseinlagerung in Bohrlöchern“** (Projekt MHV).

Gesamtziel des Vorhabens ist die Entwicklung geeigneter Methoden für die Endlagerung der genannten Abfälle in Bohrlöchern im Salz und deren Erprobung in der Schachtanlage Asse.

Die wissenschaftliche und organisatorische Leitung des Projekts liegt beim **Institut für Chemische Technologie (ICT)** der KFA Jülich.

Das Institut für Tief Lagerung (IfT) der Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung (GSF) ist für die geomechanischen und bergmännischen Arbeiten im Projekt zuständig, es betreut die in situ-Versuche und ist als Eigner der Schachtanlage Asse Antragsteller für die Versuche gegenüber den Genehmigungsbehörden.

Geomechanische Rechnungen werden von der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR) durchgeführt.

Das Bundesamt für Strahlenschutz (BfS), die Gesellschaft für Nuklear-Service (GNS), die Deutsche Gesellschaft zum Bau und Betrieb von Endlagern für Abfallstoffe (DBE) sowie das Projekt Hochtemperaturreaktor-Brennstoffkreislauf (HBK) beraten die Projektleitung und tragen dafür Sorge, daß die Randbedingungen der Abfallverursacher und des Abfallbeseitigers (Gorlebenplanung) berücksichtigt werden.

Vorwort

Die Verfasser danken Herrn Dr. E. B a r n e r t
(Forschungszentrum Jülich GmbH-ICT-) für seine Anregungen und
die freundliche Unterstützung der Arbeit.

Übersicht

Bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle in tiefen geologischen Formationen, z.B. in Salzstöcken, kann radiolytisch entstandener Wasserstoff aus den Abfallgebinden in die Bohrlöcher entweichen und mit der Luft zündfähiges Gemisch bilden. Es wurde untersucht, inwieweit Salzgrus als Füllmaterial geeignet ist, die Ausbreitung von Wasserstoff-Flammen zu unterbinden.

Gliederung

Vorwort.....	1
Übersicht.....	2
Gliederung.....	3
1. Aufgabenstellung.....	7
2. Löschwirkung von Granulaten.....	9
3. Versuchseinrichtung.....	13
4. Versuchsdurchführung.....	23
5. Versuchsauswertung.....	27
6. Versuchsparameter.....	29
7. Versuchsergebnisse und deren Interpretation.....	32
8. Zusammenfassung.....	45
9. Schrifttum.....	47

ANHANG: Messprotokolle

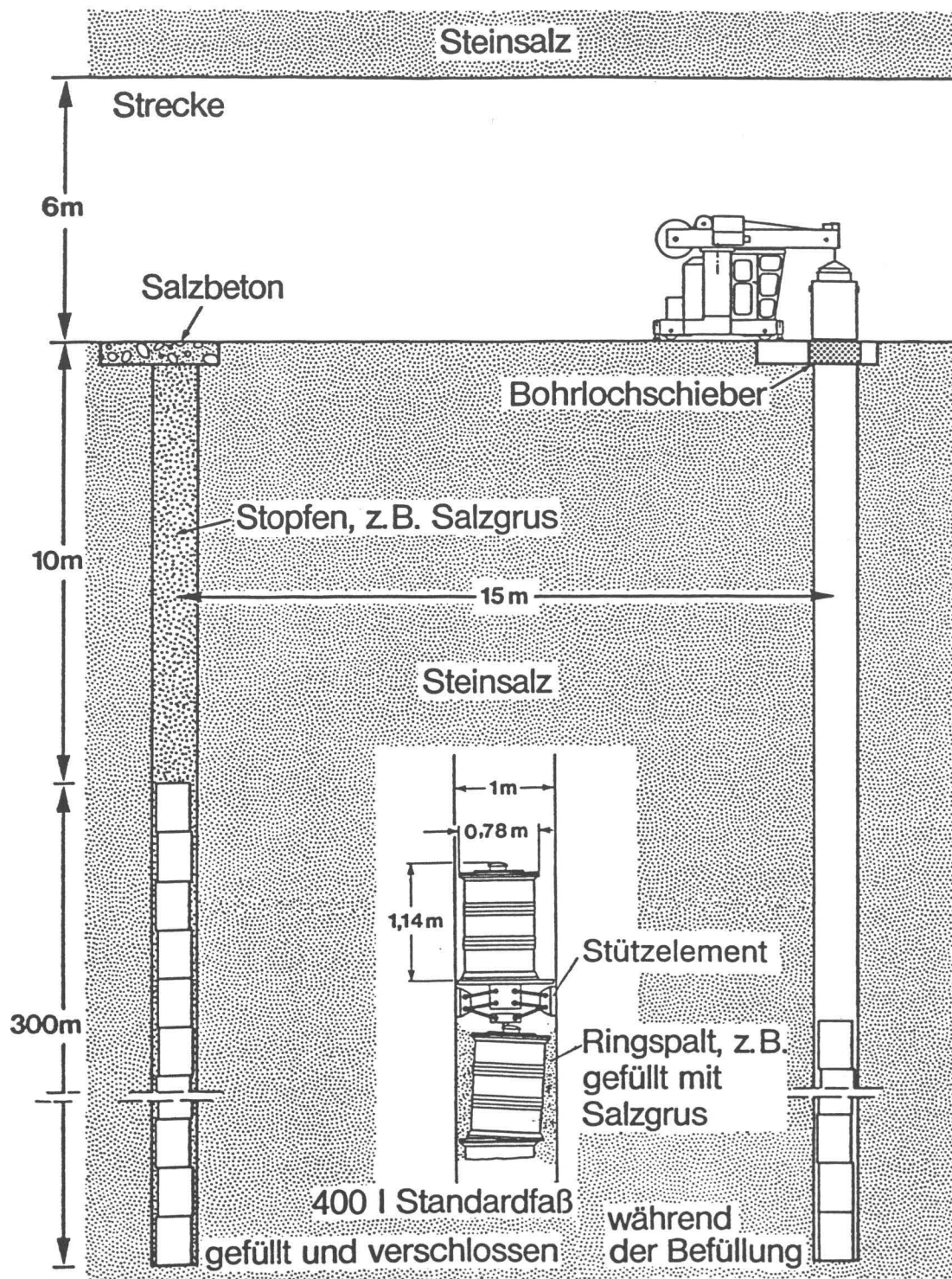


Bild 1: Endlagerung von MAW und HTR-Brennelementen in Steinsalzformationen (nach /1/, Seite 25).

1. Aufgabenstellung

Das Forschungszentrum Jülich GmbH (KFA) bearbeitet seit 1983 das Projekt "MAW- und HTR-BE-Versuchseinlagerung in Bohrlöchern", in dessen Rahmen die Technik für die Endlagerung mittelradioaktiver Abfälle aus der Wiederaufarbeitung von Leichtwasserreaktor-Brennelementen, sowie verbrauchter Brennelemente von Hochtemperaturreaktoren entwickelt werden soll /1/ .

Es ist vorgesehen, die Abfälle in 400-Liter-Standardfässern in Bohrlöchern zu lagern, die in Salzstöcken niedergebracht wurden (Bild 1). Dabei ist zu beachten, daß die einzementierten radioaktiven Abfälle Wärme entwickeln, und daß aus dem freien Restwasser der Zementmatrix der Gebinde radiolytisch Wasserstoff freigesetzt werden kann, der dann aus den Fässern in die Bohrlöcher entweicht (siehe /1/, S.38 ff).

Da sich dabei mit der Luft ein zündfähiges Gemisch bildet, entsteht evtl. die Gefahr fortschreitender Flammenfronten (Deflagrationen oder Detonationen), wenn man einmal das Vorhandensein örtlicher Zündquellen voraussetzt. Aus sicherheitstechnischen Gründen müssen solche Verbrennungserscheinungen unterbunden werden.

Im unverfüllten Teil des Bohrloches wird die Explosionssicherheit durch die Einhaltung einer maximalzulässigen Gasgrenzkonzentration sichergestellt. Diese Grenzkonzentration beträgt im Bergbau in der Regel 20% der die theoretische Zündgrenze bildenden Konzentration eines Gases in einem Gasgemisch. Für Wasserstoff ergibt das einen Grenzwert von 0,8 Vol. % H_2 in der Luft, der im zu betreibenden Teil des Bohrloches einzuhalten ist.

Die Einhaltung dieser Grenzkonzentration kann durch Begrenzung der H_2 -Quellterme und durch kontrolliertes Spülen bzw. Absaugen der Atmosphäre des noch nicht mit Gebinden beladenen Bohrlochteils erfolgen. Infolge der Einlagerung der Gebinde wird die Atmosphäre des ungefüllten Bohrlochteils in kurzen Abständen (Einlagererrhythmus) durch die entstehende Kolbenströmung um die Gebinde herum intensiv durchmischt, so daß eventuelle Konzentrationsanhäufungen von H_2 vermieden werden.

Im bereits beladenen Teil des Bohrloches ist die Forderung nach Einhaltung einer maximalen H_2 -Konzentration von 0,8 Vol.% an

jeder Stelle des Bohrlochteils nicht sicher zu erreichen, so daß theoretisch die Möglichkeit zur Entzündung des Wasserstoff-Luft-Gemisches gegeben ist.

Eine Möglichkeit zur Unterdrückung unerwünschter Flammenausbreitung besteht darin, die Löschwirkung von Schüttungen aus Granulaten /2/ zu nutzen. Die Hohlräume, die im rechten Bohrloch (Bild 1) außerhalb der Fässer verbleiben, müßten hierbei mit einem körnigen Material gefüllt werden. Es wäre naheliegend, als Füllmaterial für den Ringspalt zwischen den Fässern und dem Bohrloch den erbohrten Salzgrus zu verwenden. Die vorliegende experimentelle Untersuchung befasst sich mit der Frage, inwieweit Salzgrus als sichere Flammensperre in Wasserstoff-Luft-Gemischen dienen kann.

2. Löschwirkung von Granulaten

Eine Schüttung aus körnigem Material kann einen Flammendurchschlag in zündfähigem Gemisch durch Oberflächen-Einflüsse unter bestimmten Voraussetzungen behindern oder ganz unterbinden. In der Verbrennungstechnik benutzt man in diesem Zusammenhang den englischsprachigen Begriff des "Quenching" von Verbrennungsreaktionen an Wandungen. Dieses Phänomen der inhibierenden Wirkung von Wandoberflächen auf Flammen wurde für verschiedenste Brenngase untersucht und wird in den grundlegenden Lehrbüchern und Vorlesungen zur Verbrennungstechnik beschrieben (z.B. /3/ bis /6/). Man weiß seit langem, daß für die Löschwirkung der Wandungen zwei unterschiedliche Einflüsse verantwortlich sind:

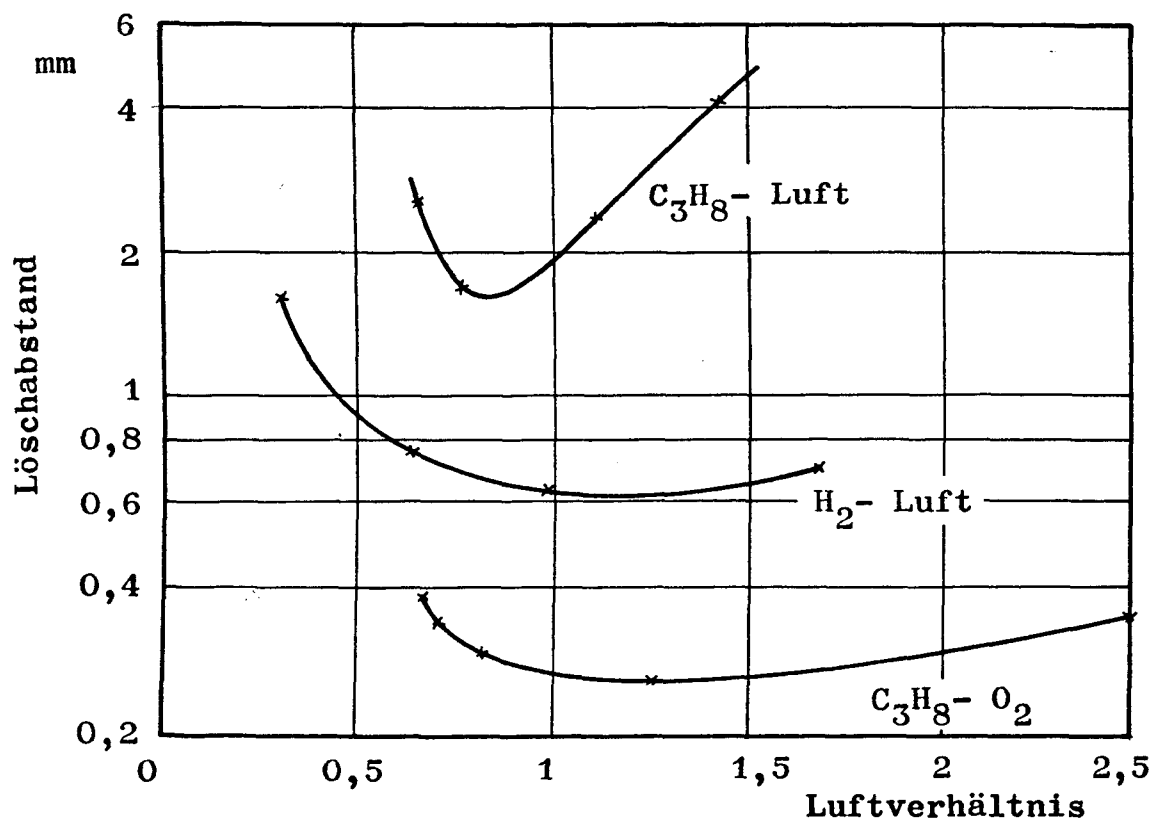
einmal heterogene Oberflächen-Reaktionen, die zum Abbau der in der Gasphasenreaktion wirksamen freien Radikale (wie O - Atome, H - Atome, OH - Moleküle) führen, zweitens die Aufnahme thermischer Energie durch die Wandoberfläche, die eine Temperaturabsenkung im reagierenden Gasgemisch in Wandnähe bewirkt und dadurch die Reaktionsgeschwindigkeiten verringert. Man hat, kurz gesagt, die Summe aus chemischen und thermischen Effekten.

Nach neueren Untersuchungen /7/ überwiegen bei CH₄-Flammen (wahrscheinlich auch bei höheren Kohlenwasserstoffen) die chemischen Effekte, während bei Wasserstoff-Luft-Gemischen die heterogenen Oberflächenreaktionen den Ablauf der Verbrennung relativ schwach behindern und die Löschwirkung in erster Linie auf thermischen Verlusten der Verbrennungsfront beruht. Hier dürften die Grenzbedingungen für das Löschen der Flamme also in erster Linie von der Peclet-Zahl:

$$Pe = \frac{\text{an der Wand abgeführter Wärmestrom}}{\text{Enthalpiestrom der Verbrennung}}$$

abhängen (siehe im einzelnen /8/, S.13 ff.).

In jedem Fall sind für die Quenching-Wirkung Transportphänomene in der Gasphase vorauszusetzen, woraus folgt, daß Quenching nur in wandnahen Schichten auftreten kann. Dies wird durch die Beobachtungen bestätigt. Der Löschabstand ("Quenching-Distance") ist abhängig von dem betrachteten Brenngas, von dem Mischungsverhältnis mit Luft, von der Gasdichte und -temperatur, um die wesentlichen Parameter zu nennen.



Löschabstände verschiedener Gemische (1 bar, 293 K)

Bild 2: Löschabstände verschiedener Brenngas-Luft-Gemische
(nach /6/, Seite 60).

Andere Größen, wie z.B. die Wärmeleitfähigkeit oder die Wandstärke der inhibierenden Wandung, scheinen die Quenching-Eigenschaften nicht wesentlich zu beeinflussen (vgl./2/, Seite 19). Andererseits ist bekannt, daß gewisse Materialien an ihrer Oberfläche positiv auf die Verbrennungsreaktionen einwirken können (sogenannte "Katalysatoren"). Hier hat man es gewissermaßen mit einer Umkehrung der Quenching-Wirkung zu tun.

Wichtig im Rahmen der vorliegenden Untersuchung ist die Tatsache, daß gerade Wasserstoff-Luft-Gemische relativ geringe Löscharstände aufweisen. Reaktionen in solchen Gemischen werden also durch Quenching nur auf geringe Distanzen beeinflußt. Dies verdeutlicht Bild 2 (aus /6/). Während man z.B. bei Propan-Luft-Gemischen, etwa bei den im Labor üblicherweise vorliegenden Druck- und Temperaturbereichen, Löscharstände in der Größenordnung von einem bis zwei Millimeter feststellt, liegen die entsprechenden Löscharstände bei Wasserstoff-Luft-Gemischen im Bereich weniger Zehntelmillimeter. Messungen von W.BARTKNECHT (/9/, Seite 157) bestätigen dies quantitativ.

Bild 2 läßt außerdem eine Abhängigkeit des Löscharstandes vom Mischungsverhältnis des Brenngases mit Luft erkennen. Dort wird als Parameter das sogenannte "Luftverhältnis λ " angegeben mit der Definition:

$$\lambda = \frac{\text{tatsächlicher Luftanteil im Gemisch}}{\text{stöchiometrischer Luftanteil}}$$

Hierbei versteht man unter dem stöchiometrischen Luftanteil den für eine vollständige Verbrennung des Brenngases mindestens erforderlichen Luftanteil. Der Luftanteil und der Brenngasanteil können z.B. durch ihre Partialvolumina gegeben sein.

Nach Bild 2 hat der Löscharstand d bei Wasserstoff-Luft-Gemischen etwa bei dem Luftverhältnis $\lambda = 1,2$ ein Minimum. Zahlenmäßig ist $d = 0,6$ mm. Nach dem Diagramm weist der Löscharstand d im Bereich des Minimums einen flachen Verlauf über dem Luftverhältnis auf. Daher sollte es nicht auf eine sehr genaue Einstellung des Luftverhältnisses ankommen, wenn man bei den Untersuchungen zum Flammendurchschlag den kritischen Fall ($d = d_{\min}$) erfassen will.

BARTKNECHT (/2/, Seite 12, Tabelle 2) ermittelte für Kugelschüttungen und Wasserstoff-Luft-Gemische die größte Durchschlag-

Häufigkeit bei Luftverhältnissen im Bereich $\lambda = 1,4$ bis $1,7$. Unter Berücksichtigung der genannten Werte wurde für die in vorliegendem Bericht beschriebenen Untersuchungen das Luftverhältnis $\lambda = 1,45$ als kritischer Wert angenommen und fast allen Messungen zugrunde gelegt. Dies entspricht einem Raumanteil des Wasserstoffs von 22,5 Vol. %. Zur Kontrolle wurden einige Versuche mit $\lambda = 1$ bzw. $\lambda = 2$ durchgeführt (29,6 bzw. 17,4 Vol. % H_2)

Da die Löschwirkung körnigen Materials (in unserem Fall also der Salzgrus-Schüttung), wie bereits dargestellt, räumlich begrenzt ist, dürfen die vom körnigen Material freigelassenen Kanäle nicht zu große Abmessungen haben. Präziser gesagt: die Abstände zwischen den Wandungen der einzelnen Körner müssen durchgehend kleiner sein als der doppelte Löscharabstand $2 d$ der Wandungen, wenn eine wirksame Flammensperre entstehen soll. Aus Sicherheitsgründen muß der Wert von $2 d$ deutlich unterschritten werden, denn nach M.FUKUDA u.a. /10/ hat der Löscharabstand Wahrscheinlichkeitscharakter. Dies bedeutet aber im Falle der Verbrennung von Wasserstoff-Luft-Gemischen, daß die Abstände zwischen den Körnern erheblich kleiner sein müssen als etwa ein Millimeter. Man wird demnach erwarten, daß z.B. bei Kugelschüttungen keine Sperrwirkung zu erzielen ist, wenn die Kugeldurchmesser über 1 mm liegen. Dies wird durch Experimente bestätigt (z.B./2/, Seite 14, Tabelle 6 unten; ebenso /11/, Seite 201). In Kiesschüttungen mit Körnungen von 10 mm und mehr wurden bei einer Schütthöhe von 2,3 Metern sogar durchlaufende Detonationen in Wasserstoff-Luft-Gemischen beobachtet (/11/, Seite 217). Man kann also die Versuchsergebnisse vorwegnehmen und vorhersagen, daß Salzgrus-Schüttung nur dann im Sinne einer Flammensperre wirksam sein können, wenn sie durchgehend Material feiner und feinsten Körnung enthalten.

3. Versuchseinrichtung

Es war Ziel der in vorliegendem Bericht dargestellten Versuche, die Flammendurchschlag-Sicherheit von Salzgrus-Schüttungen mit verschiedenen Schütthöhen h und unterschiedlichen Körnungen zu ermitteln. Zu diesem Zweck wurde ein Reaktionsbehälter entsprechend der Darstellung in Bild 3 hergestellt. Der Behälter besteht aus einem vertikal angeordneten Rohr, das durch die Salzgrus-Schüttung in zwei Kammern getrennt wird: eine kleinere Kammer oben, die als Zündstrecke dient, und eine größere Kammer unterhalb der Schüttung. Der gesamte Behälter wird mit Wasserstoff-Luft-Gemisch gefüllt (siehe Abschnitt 4: "Versuchsdurchführung"). Sicherheit gegen Flammendurchschlag ist gegeben, wenn eine in der Zündstrecke eingeleitete Deflagration das Gemisch unterhalb der Salzgrus-Schüttung - durch diese hindurch - nicht entzündet. Unter diesen Bedingungen würde sich im Ringspalt des Bohrlochs nach Bild 1 eine entstandene Flammenfront nicht fortpflanzen; die Reaktion würde beendet.

In der Zündstrecke der hier beschriebenen Versuchseinrichtung wird das Gemisch durch Funken wahlweise dicht über der Salzgrus-Oberfläche (Zündposition "nah") oder in der Nähe des oberen Abschlußflansches (Zündposition "fern" in Bild 3) in Brand gesetzt. Dabei besteht die Möglichkeit, durch Einsetzen einer SHELKIN-Spirale Turbulenz zu erzeugen und hierdurch die Flammengeschwindigkeit zu erhöhen.

Die Salzgrus-Schüttung ruht auf einem in der Höhe verstellbaren Tragsieb (Bild 4), welches durch eine Gewindestange abgestützt ist. Durch Verstellung des Tragsiebes wird die Schütthöhe h des Salzgrus variiert; dabei bleibt die Oberfläche der Schüttung stets in der gleichen Position.

Es stehen gemäß Bild 5 zwei Zündstrecken mit unterschiedlichen Volumina zur Verfügung.

Der gesamte Reaktionsbehälter (Bild 3) ist auf einem Vakuum-Behälter montiert und von letzterem durch eine Berstfolie getrennt. Diese Konstruktion dient der Betriebssicherheit beim Anlaufen von Detonationen in der unteren Kammer des Reaktionsbehälters nach Flammendurchschlägen durch die Salzgrus-Schüttung.

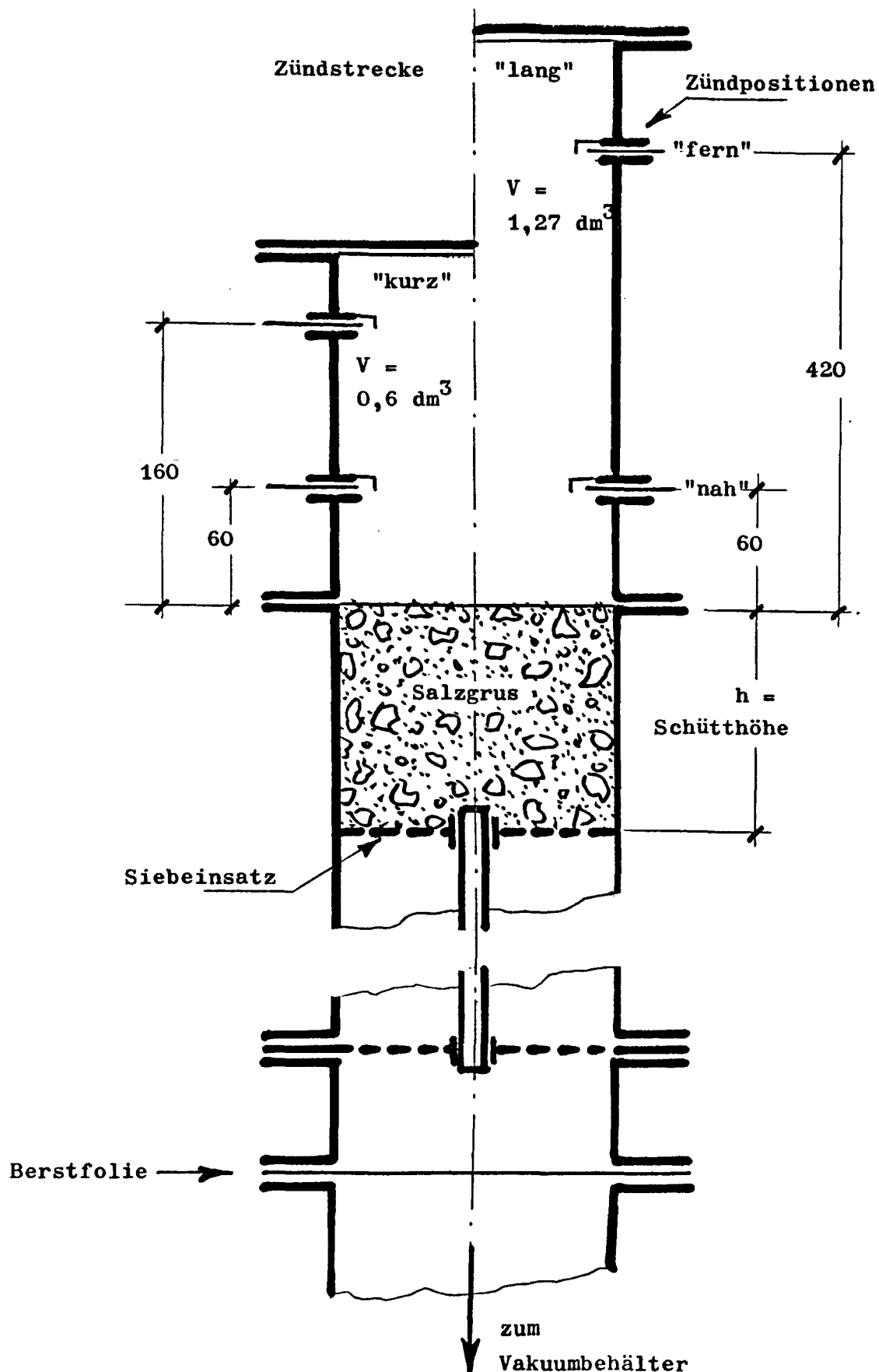


Bild 3: Reaktionsbehälter für die Untersuchung der Flammendurchschlag-Sicherheit von Salzgrus-Schüttungen.

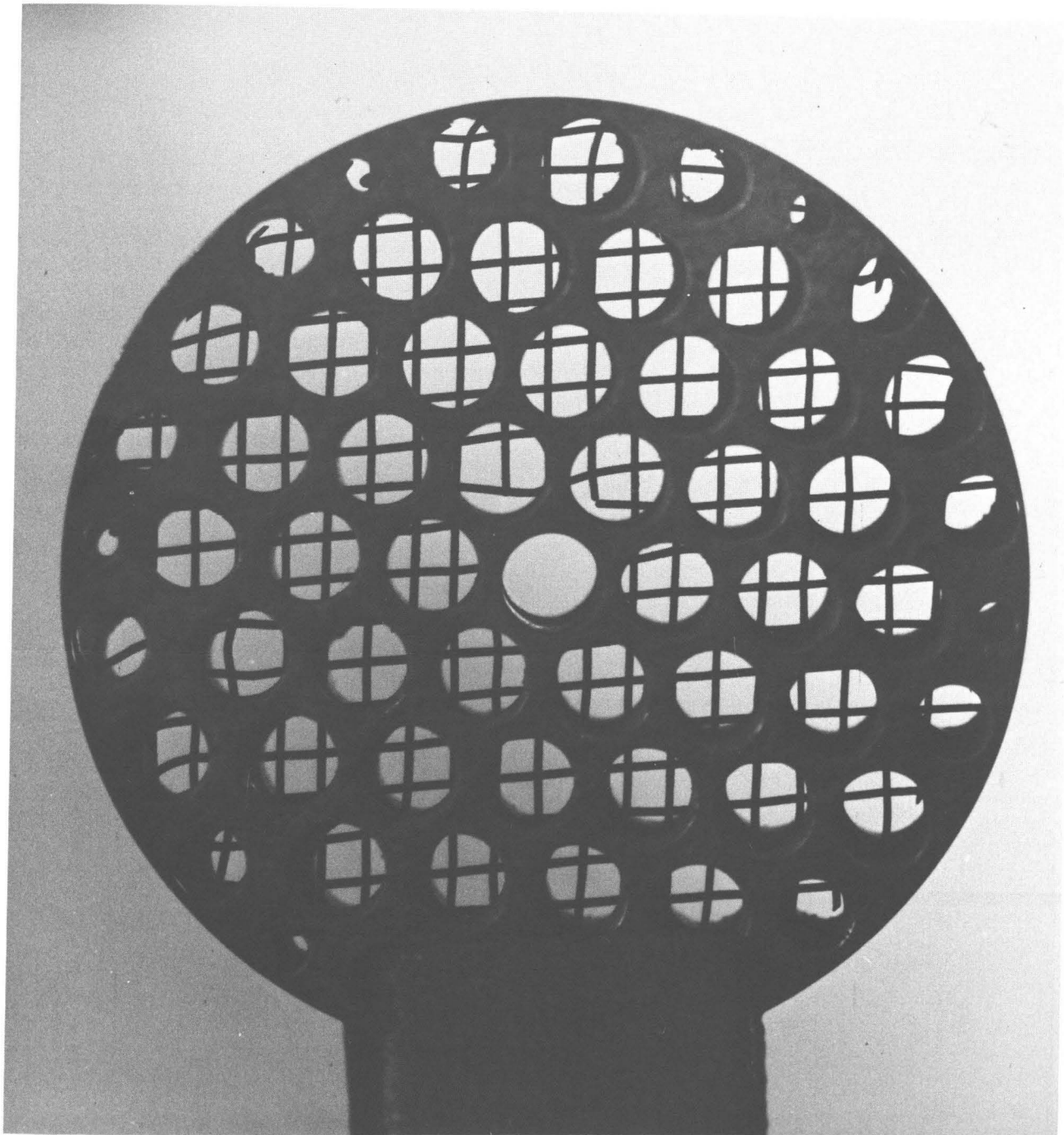


Bild 4: Verstellbares Tragsieb für Salzgrus-Schüttung.

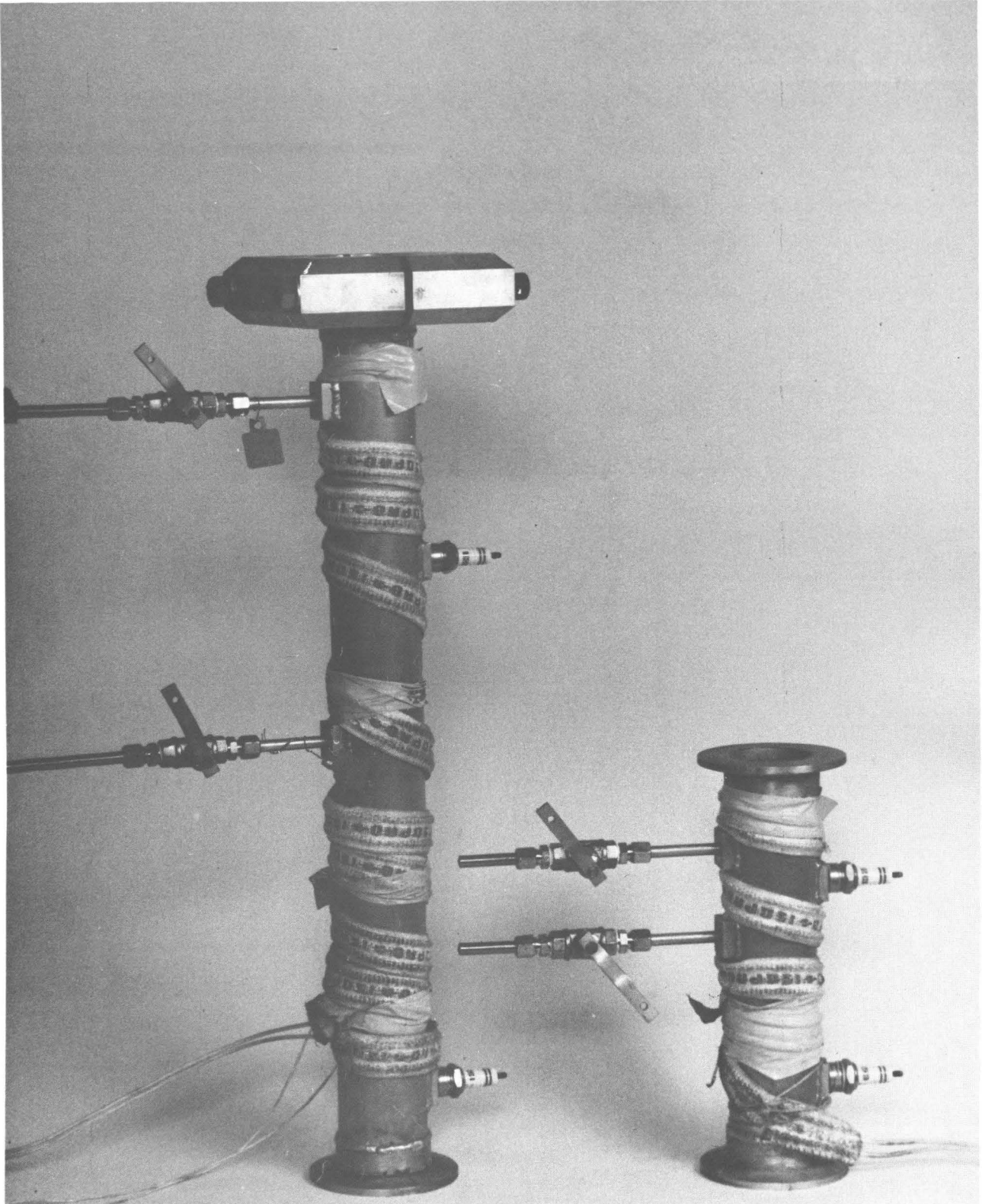


Bild 5: Zwei Zündstrecken mit unterschiedlichen Volumina.

In solchen Fällen platzt die Berstfolie, und die Detonation wird durch Verdünnungswellen aus dem Vakuum-Behälter gelöscht. Der Innendurchmesser des rohrförmigen Reaktionsbehälters wurde mit 52 mm so groß gewählt, daß auch grobkörnige Siebfraktionen von Salzgrus darin in annähernd homogener Verteilung Platz finden. Der Durchmesser ist sehr groß im Vergleich zum Löschabstand von Wasserstoff-Luft-Gemischen und hat daher auf die Sperrwirkung des zu untersuchenden Salzgrus keinen Einfluß. Die ermittelte Durchschlagsicherheit ist dementsprechend auch für die Verhältnisse bei der Lagerung radioaktiver Abfälle im Salzstock gültig, wo nach Bild 1 die Breite des Ringspalts zwischen den Fässern und dem Bohrloch 100 bis 150 mm beträgt. Eine Verfälschung der Meßergebnisse könnte indessen durch die Löschwirkung des Tragsiebes verursacht werden. Für Methan wurde die Löschwirkung von Sieben in /2/ (Seite 8 ff.) untersucht. Danach erfolgt der Zünddurchgang explosionsfähiger Brenngas-Luft-Gemische erwartungsgemäß umso leichter, je größer die lichte Maschenweite ist. Dem Bestreben nach einem sehr weitmaschigen Tragsieb sind im hier betrachteten Anwendungsfall jedoch Grenzen gesetzt, denn es soll möglichst wenig feinkörniger Salzgrus durch das Sieb hindurchfallen. Vorversuche ergaben, daß ein Sieb mit einer lichten Maschenweite von 1,5 mm und einer Drahtdicke von 0,5 mm für den Flammendurchgang bei Wasserstoff-Luft-Gemischen praktisch kein Hindernis darstellt, daß andererseits jedoch nur unerhebliche Mengen des Salzgrus hindurchfallen, selbst bei Vorhandensein feinsten, staubförmiger Anteile. Daher wurde ein solches Tragsieb als optimale Lösung angesehen und bei allen Versuchen verwendet.

Wie im Abschnitt 2 bereits erwähnt, hängt der Löschabstand d und damit die Sperrwirkung von Granulaten gegen Flammendurchtritt u.a. vom Temperaturniveau des Brenngas-Luft-Gemisches ab. Bei erhöhten Temperaturen sind die Gasphasenreaktionen schneller, daher weniger durch heterogene Kettenabbruch-Reaktionen zu verzögern. Außerdem ist der Entzug thermischer Energie durch Wandungen geringer. Insgesamt hat dies eine Verminderung des Löschabstands d zur Folge. Zur realistischen Beurteilung der Sperrwirkung von Salzgrus-Schüttungen gegen Flammendurchschlag muß daher das in den Bohrlöchern zu erwartende Temperaturniveau

möglichst genau simuliert werden. Thermische Vorberechnungen von H.-K. NIPP (in /1/, Seite 103 ff.) ergeben für den Wandbereich der Bohrlöcher eine maximale Temperaturerhöhung von 21°C, was bei einer Gebirgstemperatur von 40°C auf die Höchsttemperatur 61°C in der Salzgrus-Schüttung führt. Diese Temperatur wird in dem Reaktionsbehälter nach Bild 3 bei allen Versuchen durch thermostatische Aufheizung eingestellt und konstant gehalten. Der Gesamtaufbau der Versuchseinrichtung ist in den Bildern 6 bis 9 in fotografischen Darstellungen wiedergegeben.

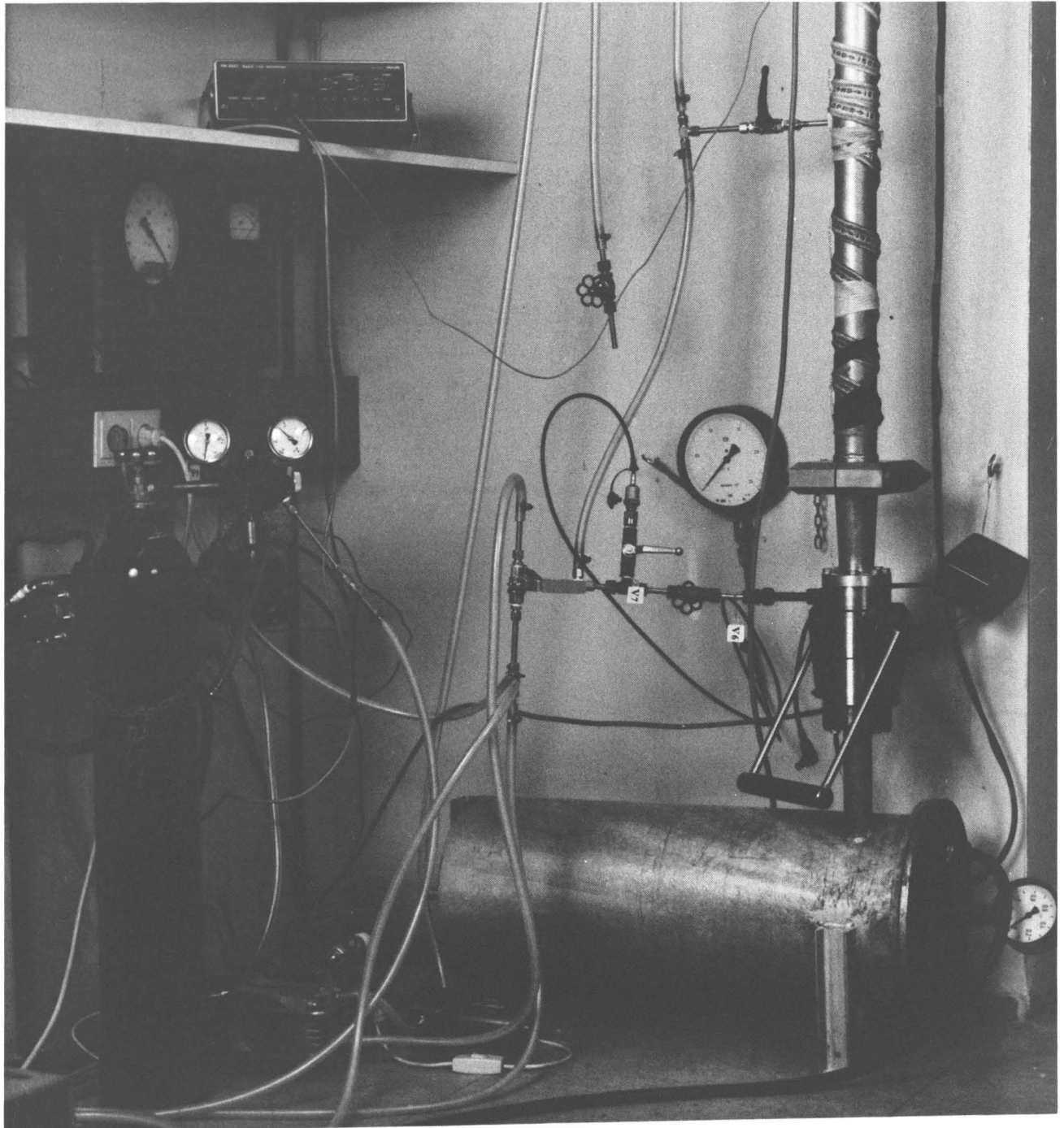


Bild 6

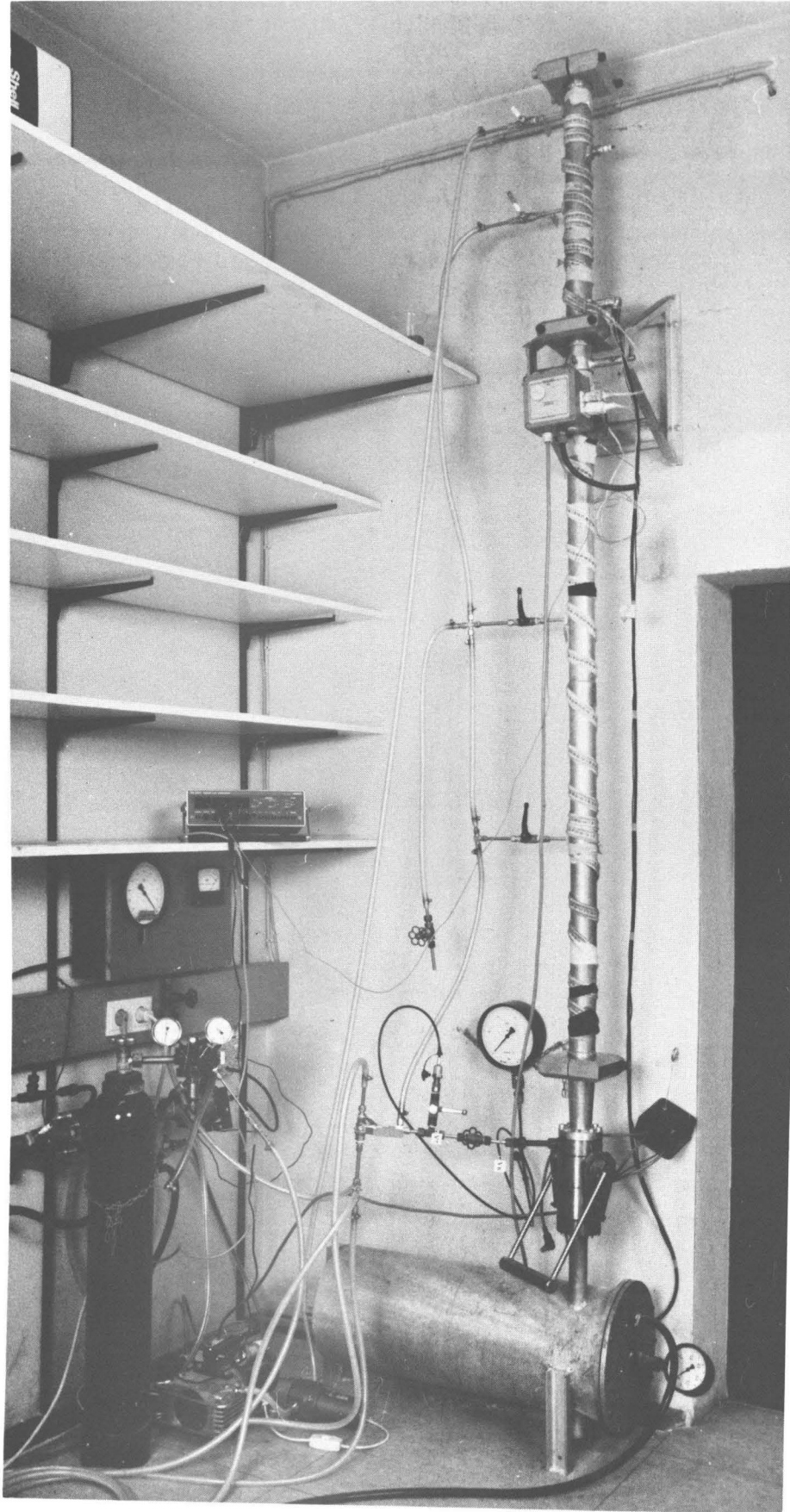


Bild 7

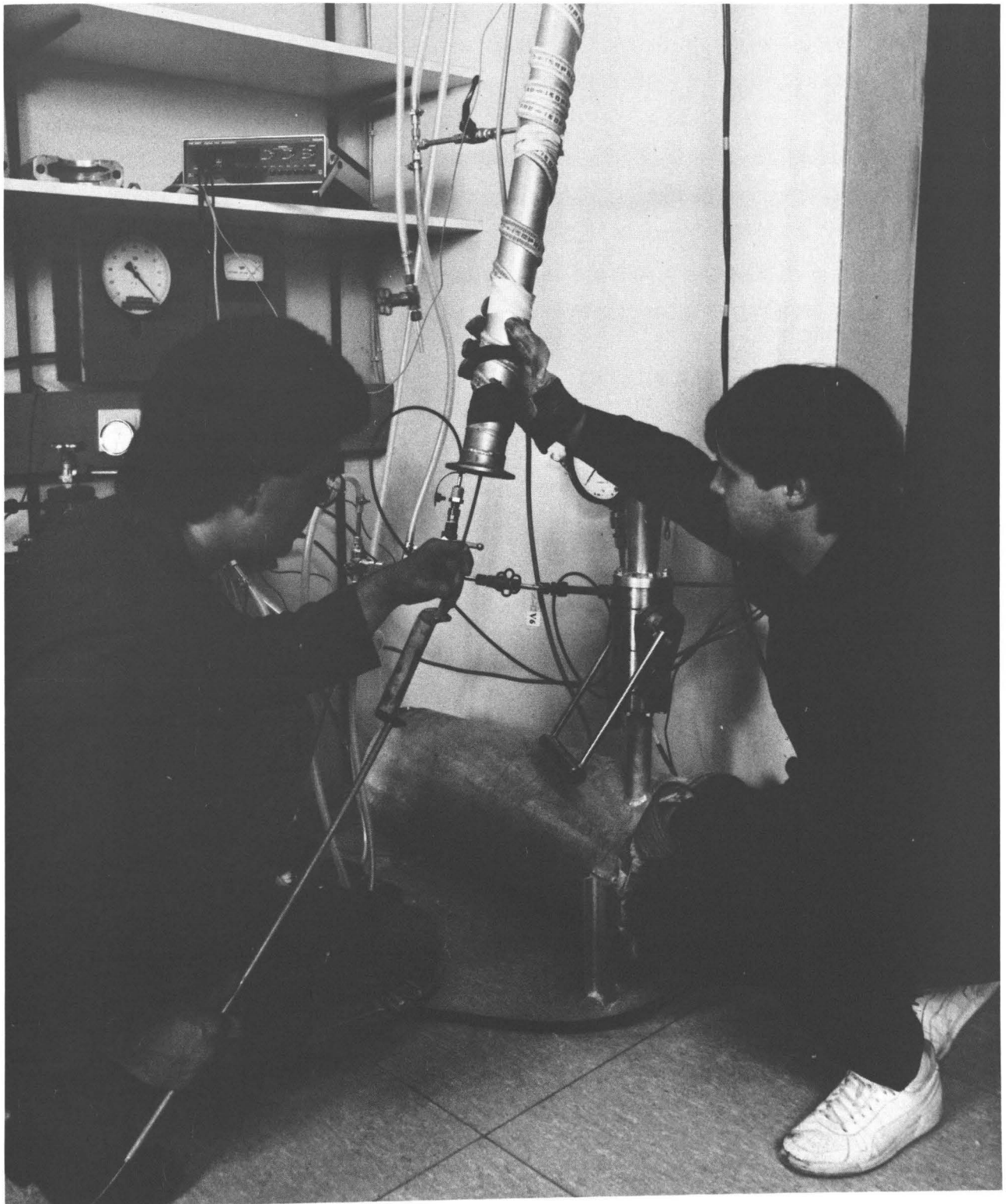


Bild 8: Einsetzen des Tragsiebes.

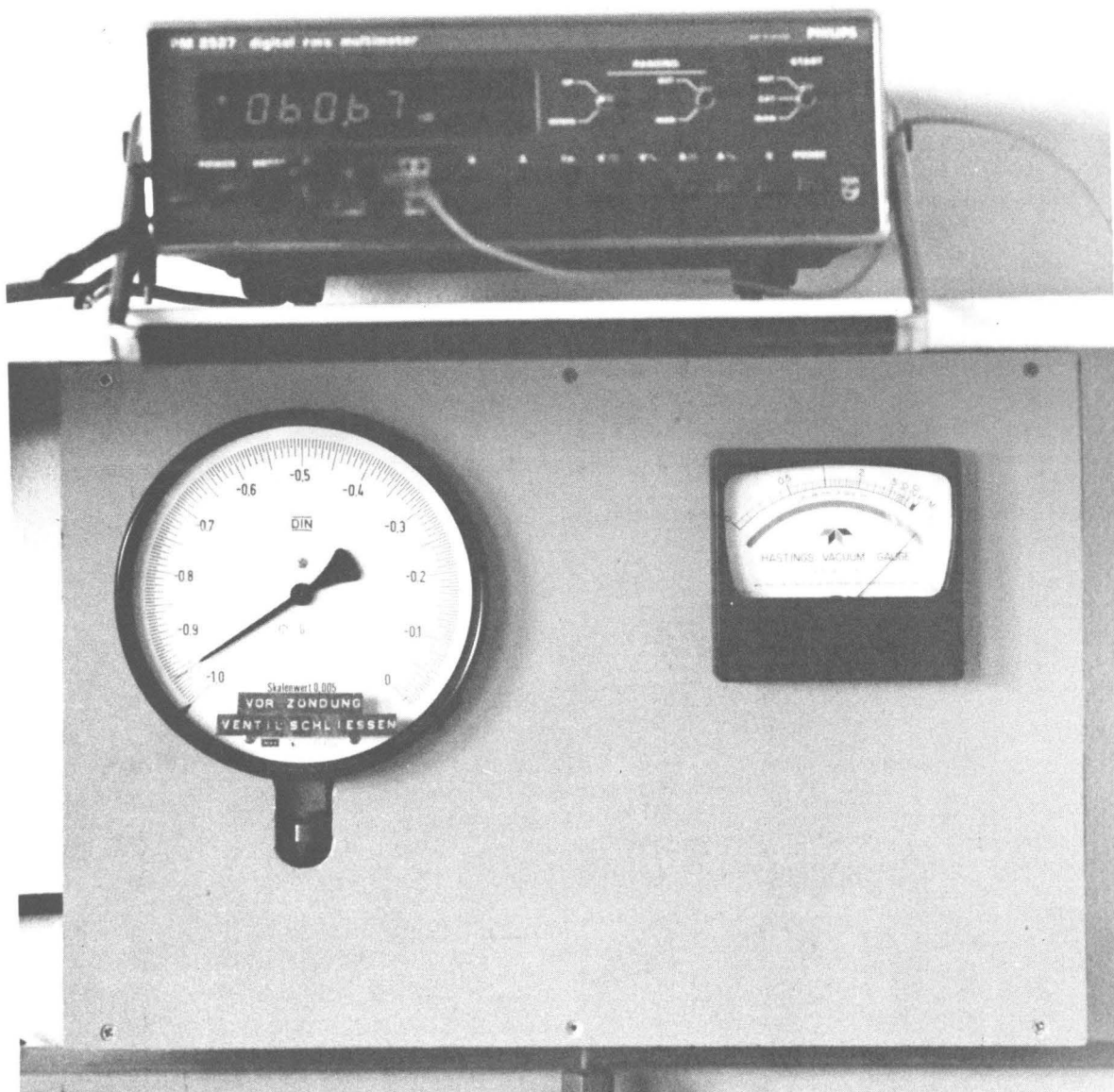


Bild 9: Unterdruckmanometer und Temperaturanzeige.

Die beschriebene Einrichtung erfüllt folgende Forderungen:

- a) Schnelles Einbringen der zu untersuchenden Salzgrus-Schüttung und genaues Einhalten der Schütthöhe h in dem Reaktionsbehälter (vgl. Bild 3).
- b) Füllen des Reaktionsbehälters nach Bild 3 mit einem homogenen Wasserstoff-Luft-Gemisch der gewünschten Zusammensetzung (siehe Abschnitt 4).
- c) Problemloses Zünden des Gemisches in der "langen" oder "kurzen" Zündstrecke in der Zündposition "nah" oder "fern".
- d) Sichere Beherrschung der in der Kammer unterhalb der Salzgrus-Schüttung evtl. auftretenden Verbrennungs-Erscheinungen, sei es eine Deflagration oder eine Detonation.
- e) Zuverlässige Identifizierung des Flammendurchschlags oder der Sperrwirkung der Salzgrus-Schüttung (siehe Abschnitt 4).

4. Versuchsdurchführung: (vgl. Bild 10)

Nach einem erfolgten Schuß wird der Reaktionsbehälter oberhalb der Folienwechsellvorrichtung vom Vakuumbehälter getrennt, um das "verbrauchte" Schüttgut gegen "frisches" zu ersetzen.

Dies geschieht derart, daß der Tragsiebeinsatz aus dem Reaktionsbehälter herausgezogen wird, um die Schüttung zu entleeren. Nach dem Wiedereinsetzen des Siebes und dem Zusammenfügen von Reaktions- und Vakuumbehälter wird die Berstfolie ersetzt. Anschließend kann die Zündstrecke demontiert und frisches Schüttgut bis zum oberen Ende der Reaktionsstrecke eingefüllt werden.

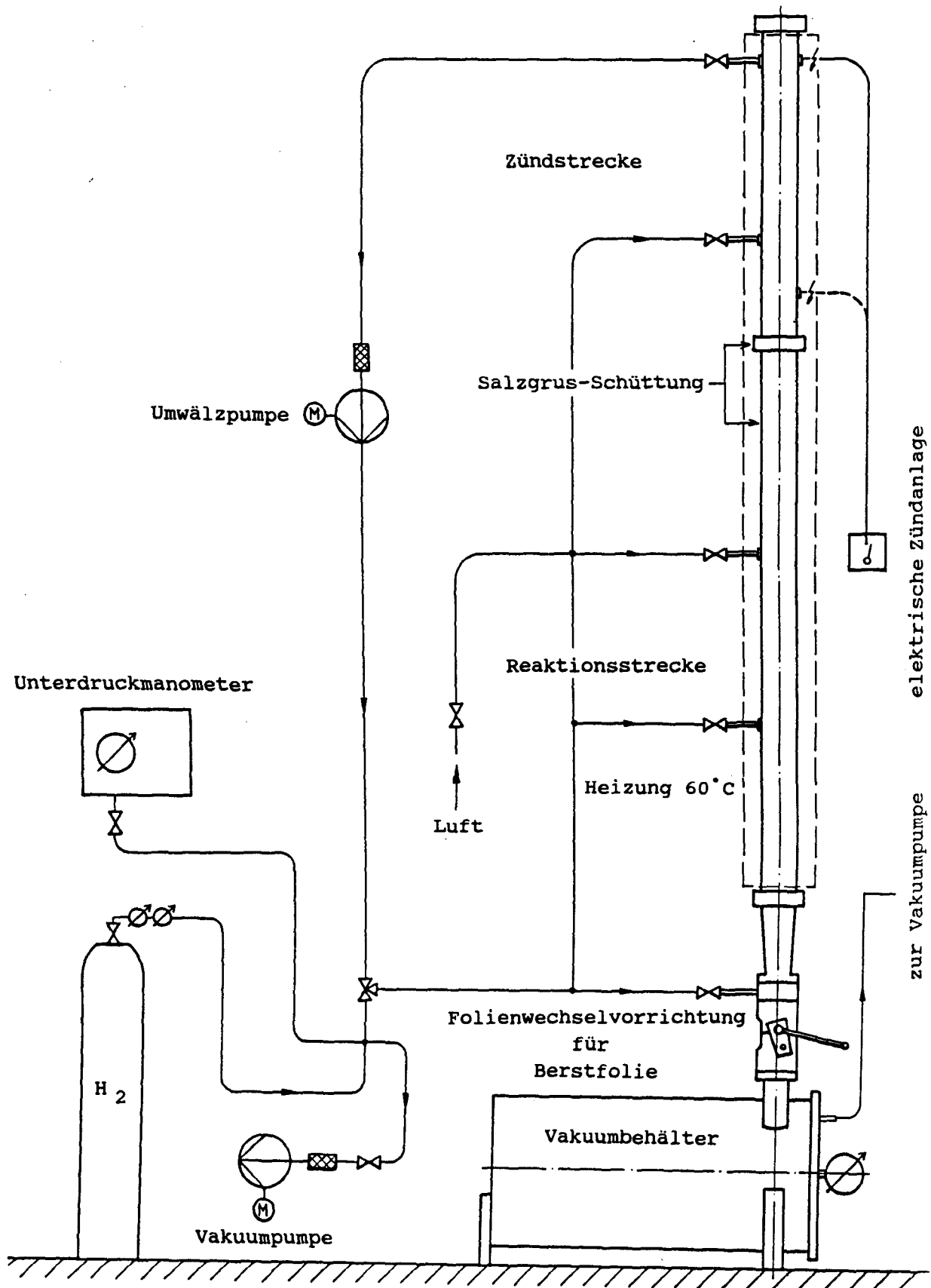


Bild 10 Funktionsschema der Versuchsanlage

Nach Montage von Zündstrecke und Reaktionsbehälter muß die gesamte Anlage, um sie mit dem Wasserstoff-Luft-Gemisch befüllen zu können, mit Hilfe einer Vakuumpumpe auf etwa 10^{-3} bar evakuiert und der erreichte Druck an einem mit dem Behälter in Verbindung stehenden Unterdruckmanometer abgelesen werden. Nun können die dem gewünschten Luftverhältnis entsprechenden Partialdrücke an Wasserstoff und Luft eingefüllt werden, bis sich im Behälter bzw. am Manometer wieder Umgebungsdruck eingestellt hat. Die Befüllung mit dem Wasserstoff-Luft-Gemisch erfolgt an insgesamt 5 Stellen, um zusammen mit dem nachfolgenden Umwälzen der Gase ein möglichst homogenes Gemisch zu erhalten. Sobald das Gemisch mindestens eine Minute umgewälzt wurde, kann nach Schließen aller Kugelhähne eine Zündung erfolgen. Dies geschieht mit Hilfe einer elektrischen Zündanlage, die mit einer der beiden Zündkerzen der Zündstrecke verbunden ist. Die Zündposition kann bei beiden Zündstrecken durch Umstecken des Zündkerzensteckers variiert werden.

Nach einer Zündung ist ein hörbarer Knall, sowie eine geplatzte Berstfolie, ein sicheres Zeichen für einen Flammendurchschlag durch die Schüttung und einer anschließenden Detonation im Reaktionsbehälter. Die anderen sich einstellenden Zustände :

- Kein Flammendurchschlag oder
- Flammendurchschlag + Deflagration,

können mit den zu Anfang der Versuchsreihe durchgeführten Referenzmessungen und den sich daraus ergebenden Drücken am Unterdruckmanometer eindeutig erkannt und zugeordnet werden. Bei den Referenzmessungen wurde die Salzgrus-Schüttung durch entsprechende löschende oder nicht löschende Siebpackungen ersetzt. Um die Sicherheit der Anlage zu gewährleisten ist, wie bereits erwähnt, die Reaktionsstrecke mit einem Vakuumbehälter verbunden, (siehe Abschnitt 3). Die Folienwechsellvorrichtung (Bild 11) mit der darin eingesetzten Berstfolie trennt Vakuumbehälter und Reaktionsstrecke. Somit muß der Vakuumbehälter getrennt vom Reaktionsbehälter evakuiert werden.

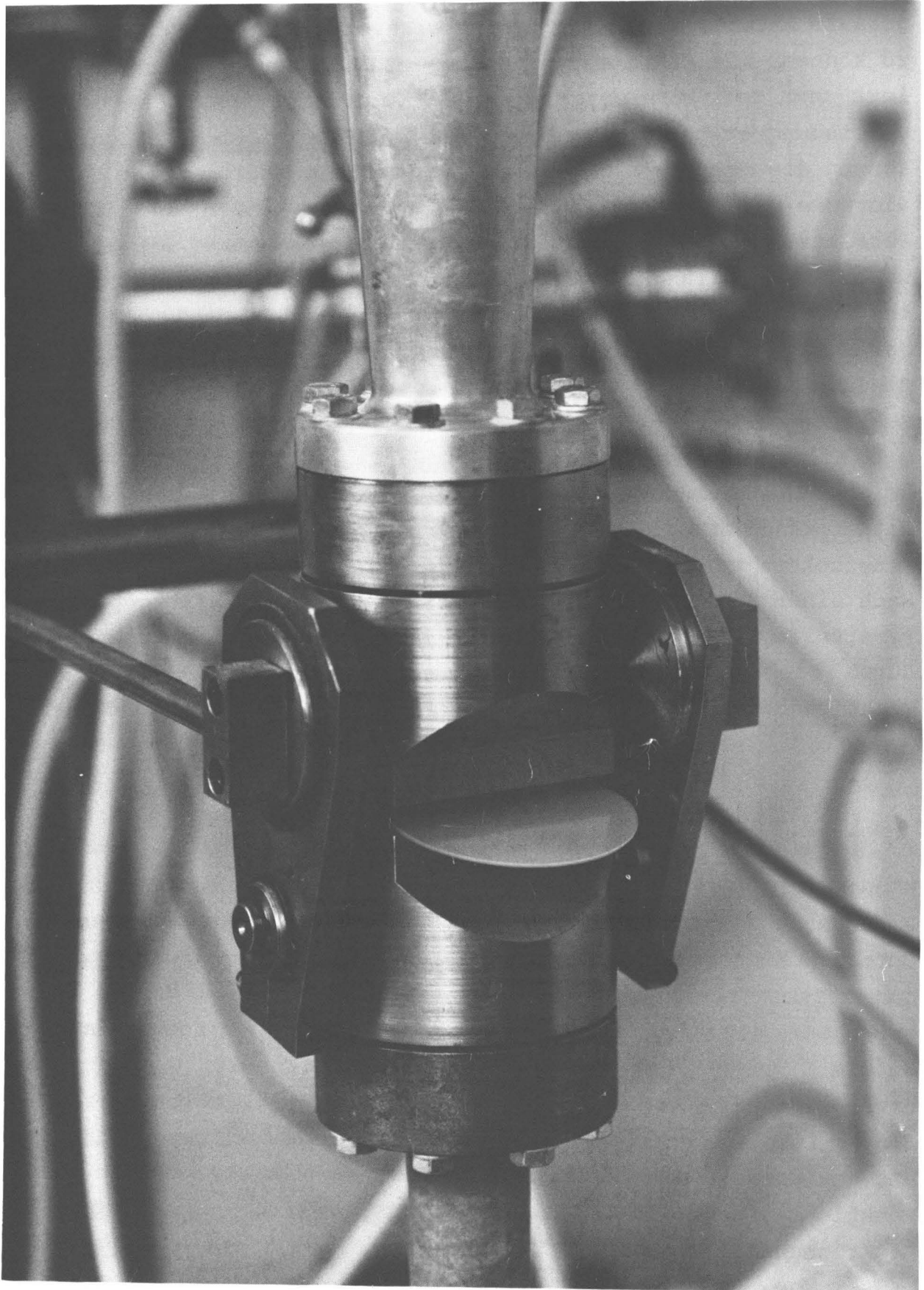


Bild 11: Folienwechsellvorrichtung mit Berstfolie.

5. Versuchsauswertung

Die Durchlagssicherheit wird in der hier beschriebenen experimentellen Untersuchung beurteilt aufgrund von Ja-Nein-Informationen vom Typ: Durchschlag oder kein Durchschlag.

Hierbei ist jedoch zu berücksichtigen, daß die Löschwirkung von Oberflächen Wahrscheinlichkeitscharakter hat (vgl. Abschnitt 2 und den dortigen Hinweis auf /10/). Die Versuchsauswertung wird damit zu einem Problem der Statistik. Hierauf hat auch W. BARTKNECHT /2/ hingewiesen, aus dessen Arbeit Bild 12 entnommen ist. Eine exaktere Erfassung des statistischen Übergangsgebiets und die dort beschriebene Ermittlung einer statistisch sicheren Schütthöhe "h" nach Bild 12 erfordert eine hohe Anzahl von Meßpunkten für jede Parameter-Kombination. Dieser Aufwand war im Rahmen der vorliegenden Untersuchung nicht zu leisten und von der Aufgabenstellung (Abschnitt 1) her auch nicht erforderlich. Die Aufgabe besteht vielmehr darin, die Möglichkeiten für eine sichere Sperrwirkung des Salzgrus gegen Flammendurchschlag unter verschiedenen Bedingungen prinzipiell nachzuweisen. Die genauere Ermittlung einer Mindestschütthöhe unter bestimmten Verhältnissen könnte Gegenstand einer späteren Untersuchung sein.

Gleichwohl bleibt die Problematik des Wahrscheinlichkeitsverhaltens, und eine Definition der "sicheren Sperrwirkung" von Salzgrus-Schüttungen ist auch für die vorliegende Untersuchung unumgänglich, wenn auch jeder solchen Definition eine gewisse Willkür anhaftet.

H.STEEN und K.SCHAMPEL (/8/, Seite 25) nahmen bei ihren Untersuchungen Flammendurchschlagsicherheit an, wenn jeweils bei drei Versuchen kein Flammendurchschlag erzielt wurde. Im vorliegenden Fall erscheint diese Definition als zu optimistisch. Daher wird für die Salzgrus-Schüttungen eine Anzahl von sieben Versuchen ohne Flammendurchschlag zur Definition der sicheren Schütthöhe "h" zugrundegelegt. Es sei als genügend genaue zahlenmäßige Eingrenzung von h angesehen, wenn die Schütthöhe von Versuch zu Versuch in Stufen von 2,5 cm variiert wird.

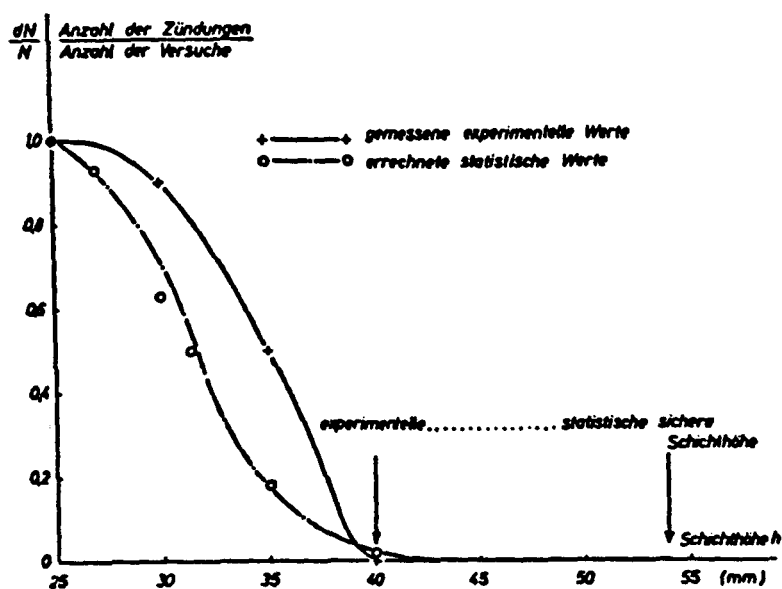


Bild 12: Das statistische Übergangsgebiet der Häufigkeit von Flammendurchschlägen durch Kugelschüttungen.
 Brenngas-Gemisch: 30 Vol% Wasserstoff, Rest Luft.
 Kugeldurchmesser 1 mm
 (nach /2/, Seite 17)

6. Versuchsparameter

Hierunter sind alle Einflußgrößen zu verstehen, von denen die "sichere Schütthöhe" einer Salzgrus-Schüttung abhängen kann. Einige dieser Einflußgrößen sind durch die Verhältnisse im Salzbergwerk praktisch vorgegeben und können konstant gehalten werden. Dazu gehören Druck und Temperatur des Wasserstoff-Luft-Gemisches, die mit ca. 1 bar und ca. 60 °C bei allen Versuchen unverändert eingestellt wurden. In gewissem Sinne ist auch das Mischungsverhältnis durch die Annahme des "schlimmsten Falles" auf das Luftverhältnis $\lambda = 1,45$ festgelegt und wird nur in wenigen Kontrollversuchen durch Wahl von $\lambda = 1$ bzw. $\lambda = 2$ variiert (vergl. Abschnitt 2).

Der Salzgrus für die Untersuchungen stand in verschiedenen Siebfraktionen zur Verfügung (vgl. Angabe der Korngrößen-Bereiche, wie sie nachfolgend unter (a) aufgelistet sind). Die als "unfraktioniert" bezeichnete Schüttung umfaßte Korngrößen zwischen 0 und 32 mm. Die Anteile der Korngrößen im unfraktionierten Salzgrus entsprachen den Kurvenverläufen in Bild 13.

Massenanteil in %
der Schüttung.

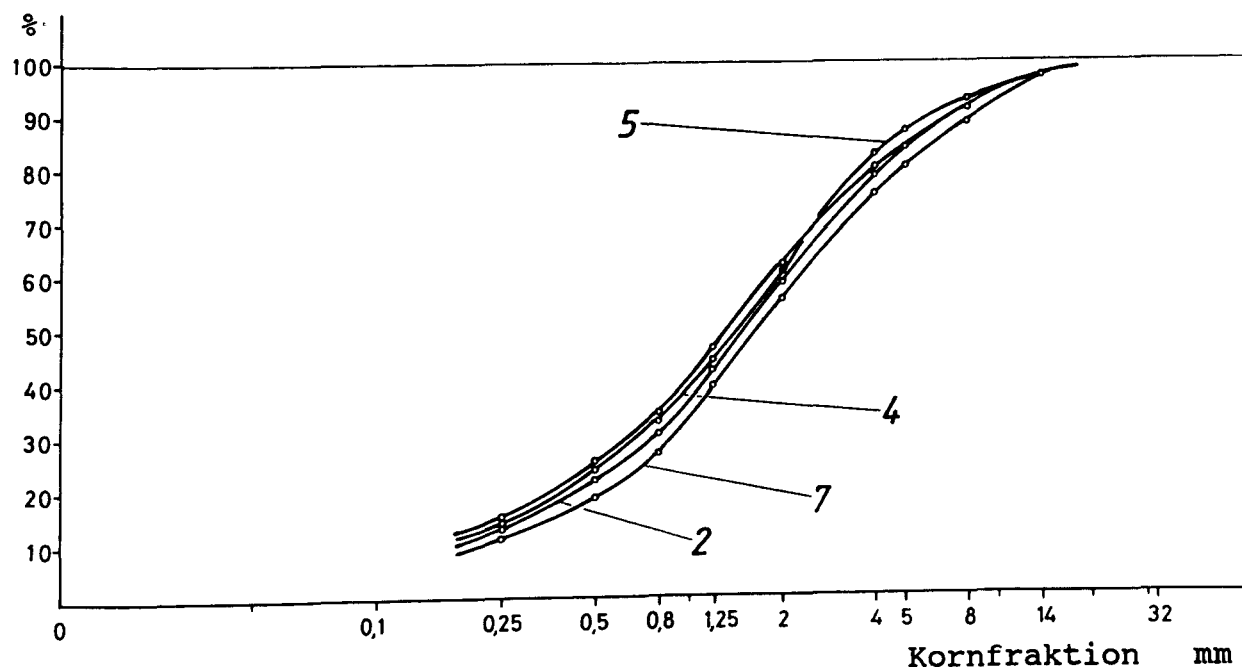


Bild 13: Zusammensetzung des Salzgrus aus Anteilen verschiedener Körnung.

Bild 13 (nach /12/) zeigt Korngrößen-Verteilungen für vier unterschiedliche, aus dem Gesamtvorrat des unfraktionierten Salzgrus entnommenen Proben. Die geringe Streuung der Kurven läßt den Schluß zu, daß im Ausblick auf die Sperrwirkung gegen Flammendurchschlag hier gleichmäßige Bedingungen vorliegen. Die Feuchtigkeit des Salzgrus wurde ebenfalls untersucht /12/. Zur Bestimmung des Feuchtigkeitsanteils diente die Ermittlung des Massenverlustes infolge einer 20 Stunden währenden Trocknung bei einer Temperatur von 125 °C (vgl. hierzu /13/, Seite 20). Die so bestimmte Feuchtigkeit lag bei Massenanteilen im Bereich zwischen 0,15 und 0,5 % und damit weit unterhalb der Anteile, die auf die Rieselfähigkeit des Salzgrus einen Einfluß ausüben. Auch in diesem Punkt können die Versuchsbedingungen demnach als konstant angesehen werden.

Folgende Parameter wurden bei den Versuchen variiert:

a) Einfluß der Siebfraction bzw. Korngröße des Salzgrus
mit folgenden Körnungen:

0 - 2 mm

2 - 5 mm

5 -16 mm

unfraktionierte Schüttung

(b) Einfluß des Volumens bzw. der Länge der Zündstrecke (obere Kammer des Reaktionsbehälters nach Bild 3)

- "kurze" Zündstrecke: $V = 0,6 \text{ dm}^3$

- "lange" Zündstrecke: $V = 1,27 \text{ dm}^3$

(c) Einfluß des Ortes der Zündung

- Zündposition "nah" = 6 cm oberhalb der Oberfläche der Salzgrus-Schüttung (Bild 3)

- Zündposition "fern" = 16 cm für die "kurze", bzw. 42 cm für die "lange" Startstrecke oberhalb der Oberfläche der Salzgrus-Schüttung (vgl. Bild 3).

- (d) Einfluß der Rauigkeit der Wandung in der Zündstrecke
- "glatte" Wandung (blank gezogenes Stahlrohr)
 - "rauhe" Wandung durch Einführen einer SHELKIN-Spirale (Drahtspirale mit 4 mm Drahtdurchmesser und 44 mm Innendurchmesser der Spirale)

(e) Einfluß des Luftverhältnisses

$\lambda = 1,45$ "schlimmster Fall" nach Abschnitt 2

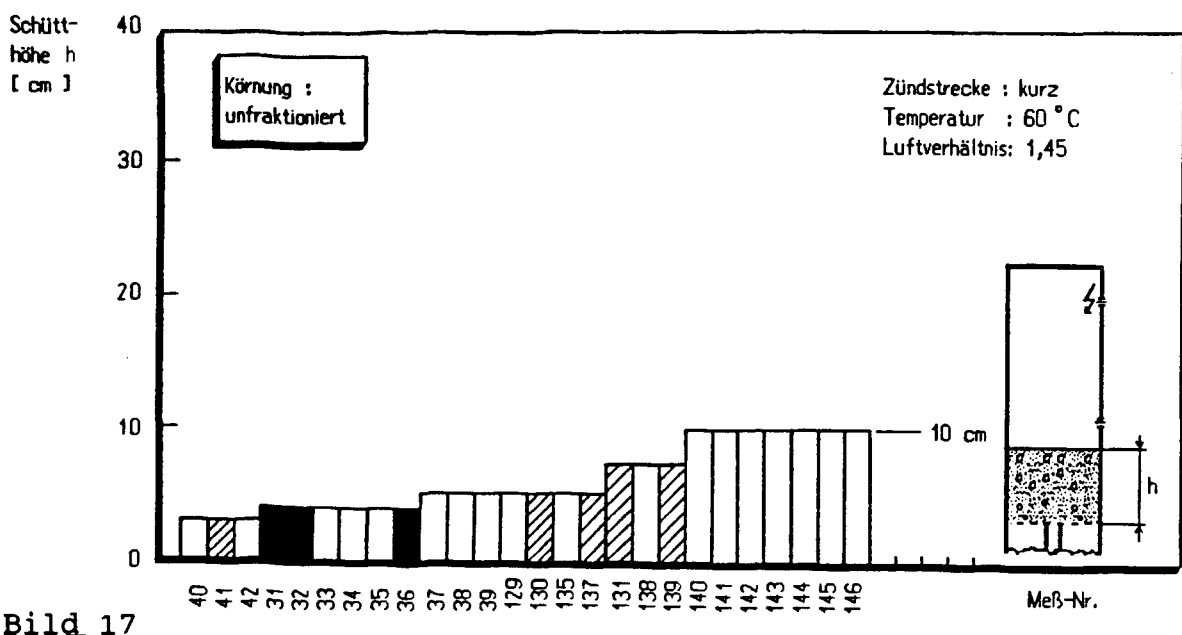
$\lambda = 1$ Kontrollversuche

$\lambda = 2$ Kontrollversuche

7. Versuchsergebnisse und deren Interpretation

(a) Einfluß der Korngröße

Offenbar gewährleistet nur eine Salzgrus-Schüttung, die feinste Körnungen enthält, eine Sicherheit gegen Flammendurchschlag, wie ein Vergleich der Bilder 14 bis 16 zeigt. Bei der Körnung 0 - 2 mm wird der Flammendurchschlag bei 6 cm Schütthöhe sicher verhindert. Für die Körnungen 2 - 5 mm und 5 - 16 mm kann keine sichere Schütthöhe gegen Flammendurchschlag angegeben werden. Nicht schlecht schneidet im Vergleich der unfraktionierte Salzgrus ab (Bild 17), der bereits ab 10 cm Schütthöhe eine sichere Flammensperre darstellt. Dieses Ergebnis würde nahelegen, teure Siebprozesse einzusparen und die Ringspalte zwischen den Endlager-Behältern und den Bohrlöchern (Bild 1) mit dem beim Bohren anfallenden Salzgrus, so wie er gewonnen wird, zu verfüllen. Hierzu sind in den folgenden Abschnitten jedoch gewisse Einschränkungen zu machen.



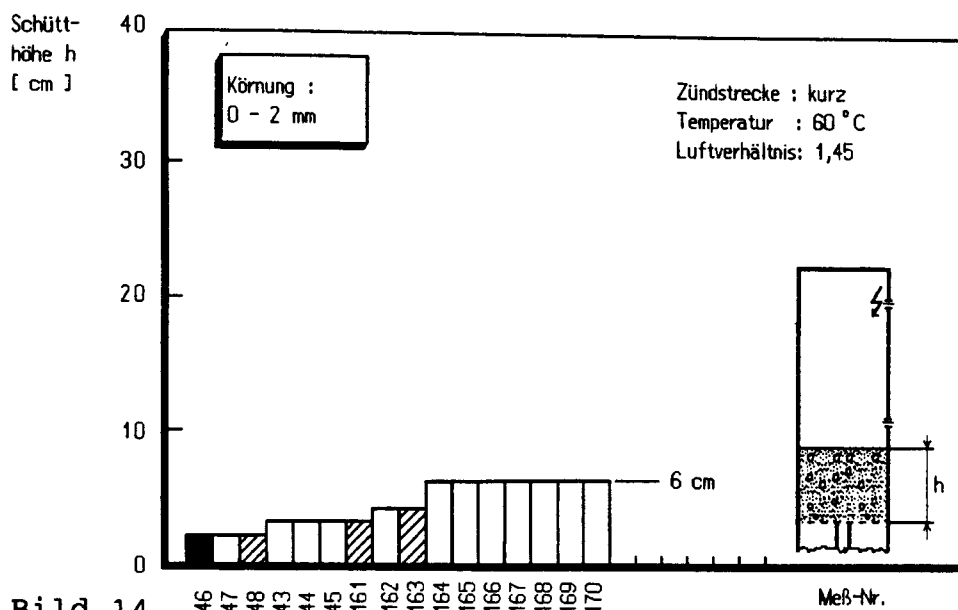


Bild 14

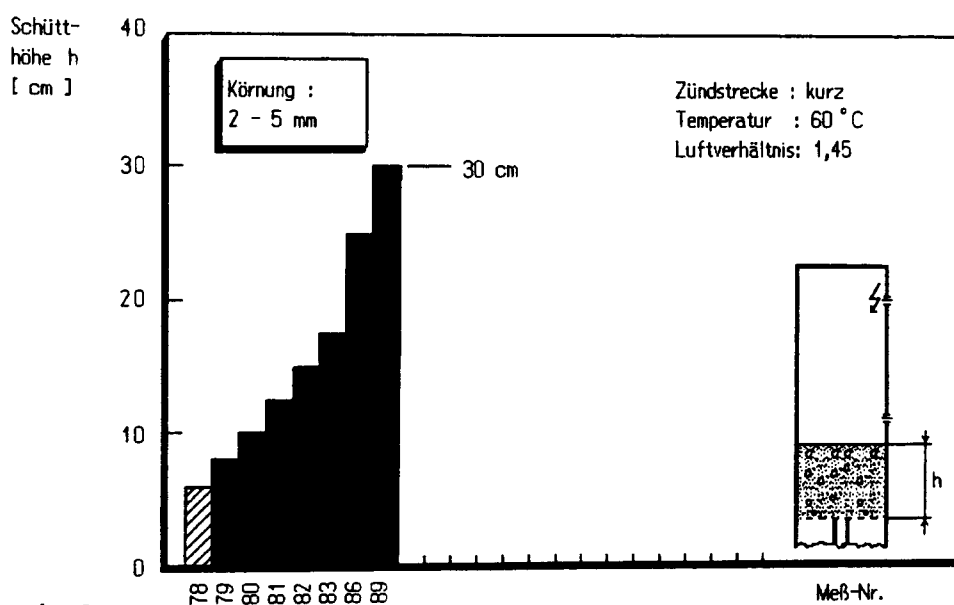


Bild 15

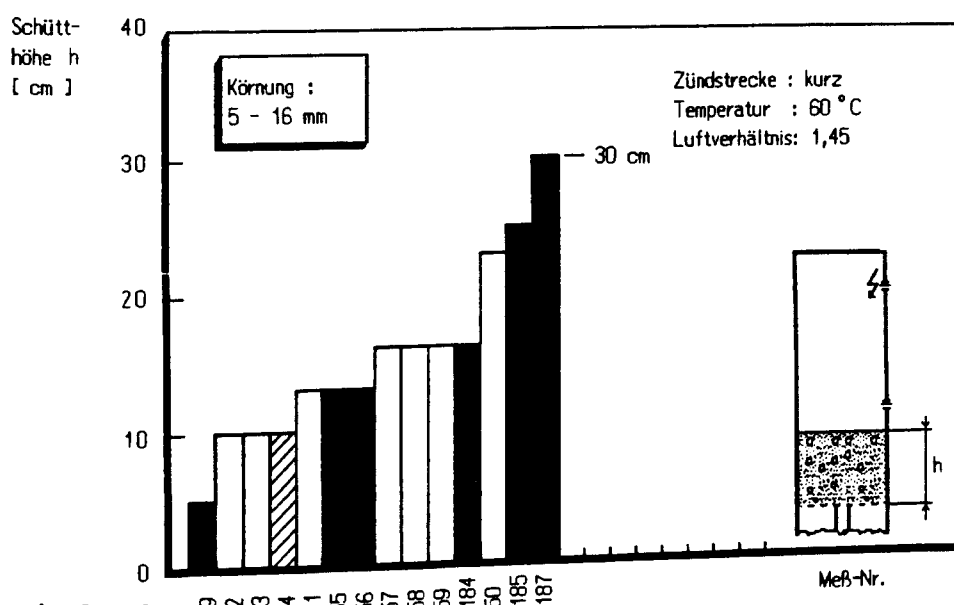


Bild 16

(b) Einfluß des Volumens bzw. der Länge der Zündstrecke

Beim Verfüllen des Salzgrus besteht die Gefahr, daß in der Schüttung kleinere oder größere Hohlräume entstehen, aus denen sich, ausgehend von einer Zündquelle, Verbrennungsfronten ausbreiten können.

Je großvolumiger ein solcher Hohlraum ist, umso länger wird die Zeit, in der durch die angrenzende Schüttung energiereiches, womöglich auch noch reagierendes Abgas mit seinem Gehalt an freien Radikalen hindurchströmt und auf das Frischgemisch unterhalb der Schüttung einwirkt. Nach dieser Überlegung müßte die längere von zwei Zündstrecken eher zum Flammendurchschlag führen.

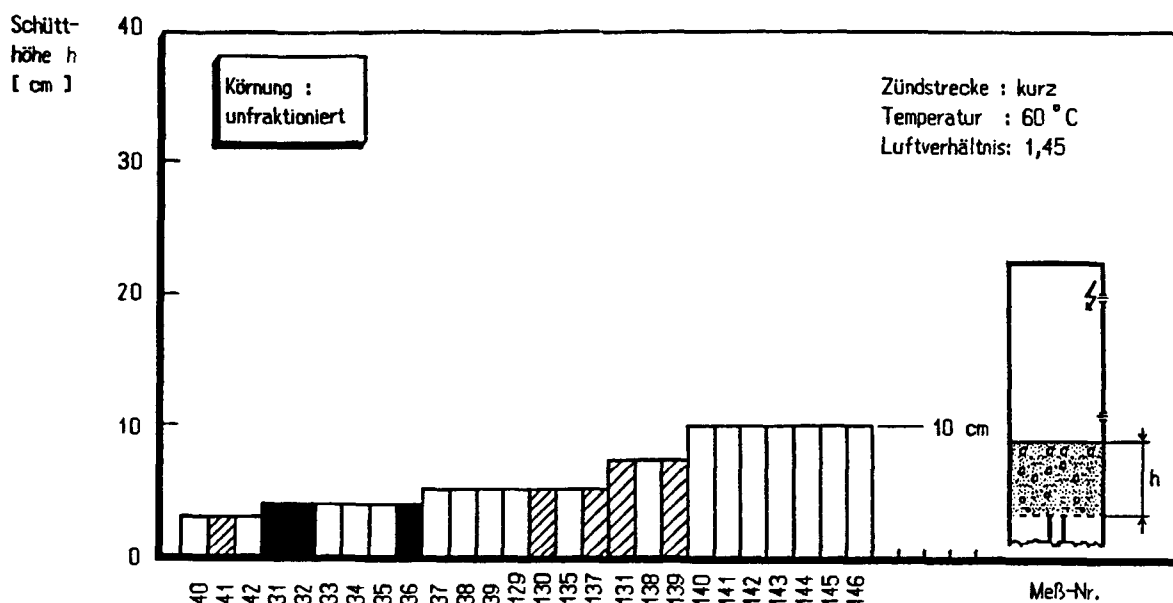


Bild 17

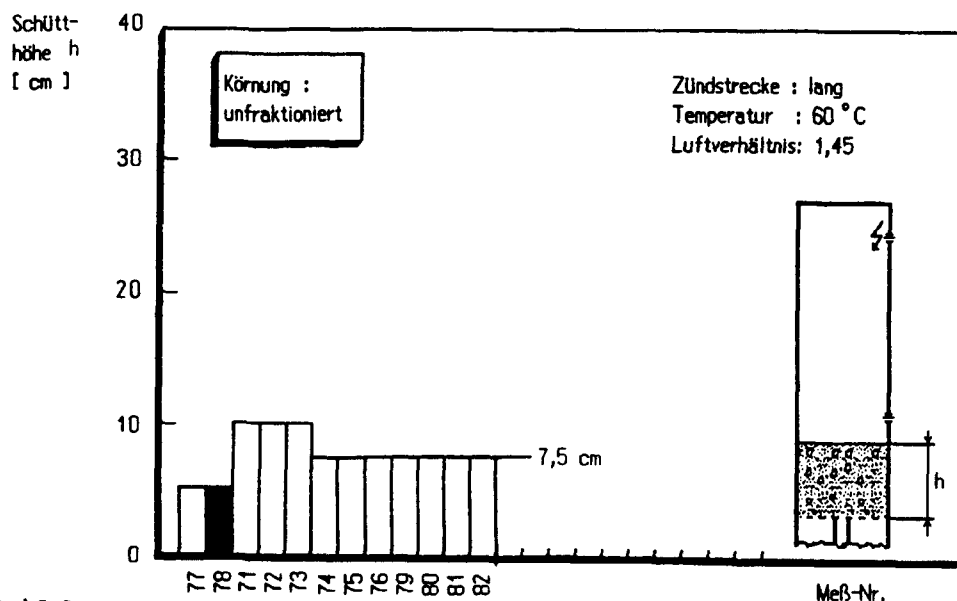


Bild 18

Die Versuchsergebnisse bestätigen dies jedoch nicht, wie ein Vergleich von Bild 17 mit Bild 18 zeigt. Im Gegenteil: die Schütthöhe konnte für das größere Zündvolumen von 10 cm auf 7,5 cm reduziert werden, also einen Wert, der bei dem kleineren Volumen bereits zum Flammendurchschlag führt (Meß-Nr. 131 und 139). Offensichtlich kommt es, wie schon unter (a) festgestellt, in erster Linie auf das Vorhandensein feinsten Bohrgutes an, welches durch das einströmende Gemisch innerhalb der Schüttung verdichtet wird. Die Verdichtung der staubförmigen Grus-Anteile ist bei gleicher Schütthöhe möglicherweise stärker und wirksamer, wenn ein größeres Volumen der Zündstrecke vorliegt.

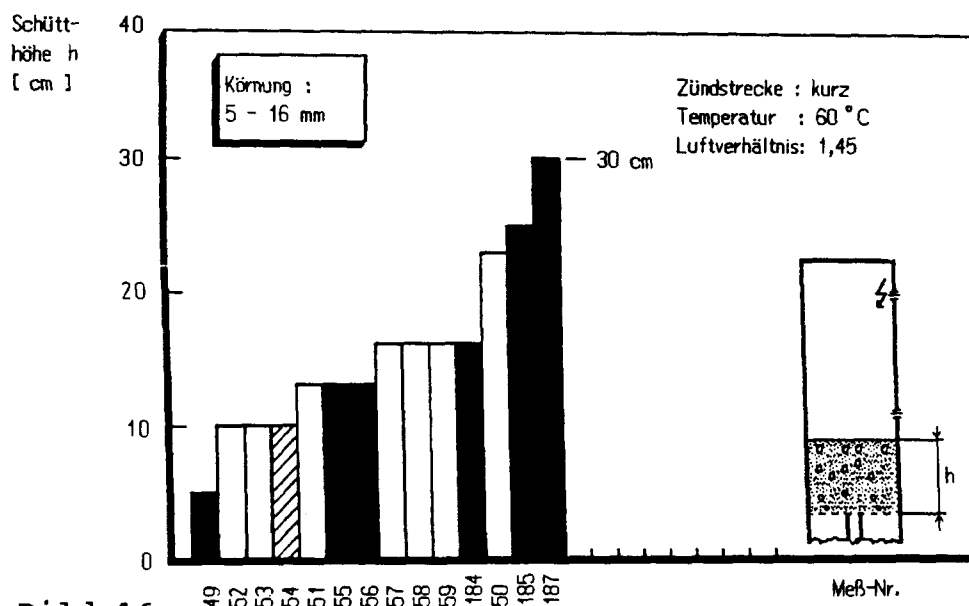


Bild 16

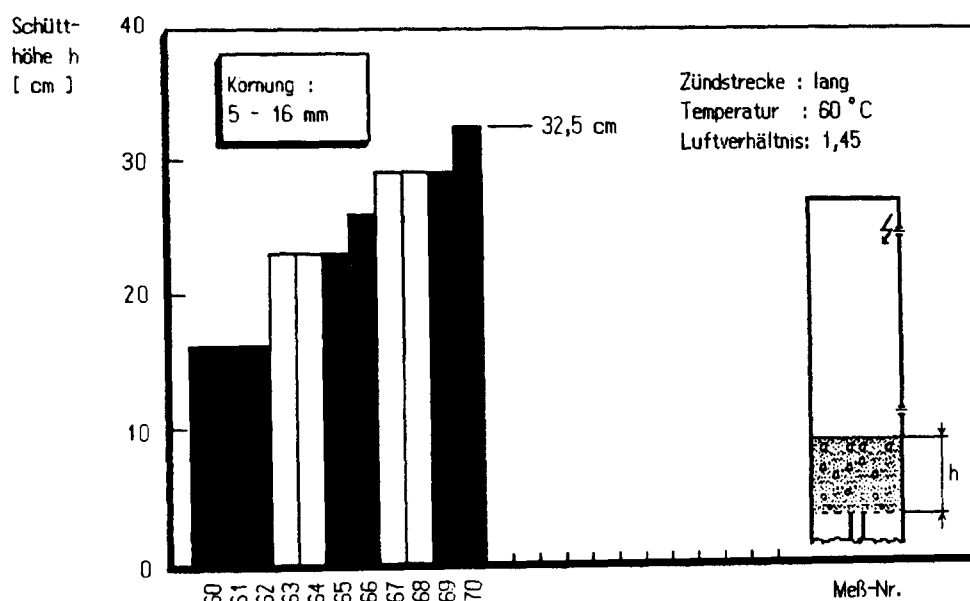


Bild 19

Hat man keine feinen Salzgrus-Anteile, so bekommt man Flammendurchschlag und Detonation im Reaktionsbehälter unabhängig von der Länge der Zündstrecke, wie ein Vergleich von Bild 16 mit Bild 19 zeigt. Man muß davon ausgehen, daß bei derart groben Körnungen die Detonation geradezu durch die Schüttung initiiert wird (/11/, Seite 222, Fig. 15).

Insgesamt ist nach diesen Ergebnissen der Einfluß des Zündvolumens eher gering einzuschätzen, jedoch wären ergänzende Versuche mit noch größeren Zündstrecken, evtl. auch mit solchen, die ein anderes Durchmesser/Längen-Verhältnis aufweisen, wünschenswert. Solche Untersuchungen können in dem gegebenen Rahmen des vorliegenden Auftrags nicht mehr durchgeführt werden.

Im Übrigen sei darauf hingewiesen, daß die gewählte Versuchsanordnung den ungünstigsten Fall repräsentiert, in dem die Zündstrecke, mit Ausnahme der Schüttungsoberfläche, allseitig von festen Wandungen begrenzt wird. In Bohrlöchern haben Volumina mit zündfähigem Gemisch mindestens an zwei Seiten mit Schüttgut Kontakt, wodurch die Zündfähigkeit einer solchen Höhlung unter Umständen reduziert wird, weil das entstehende Heißgas beidseitig abströmen kann.

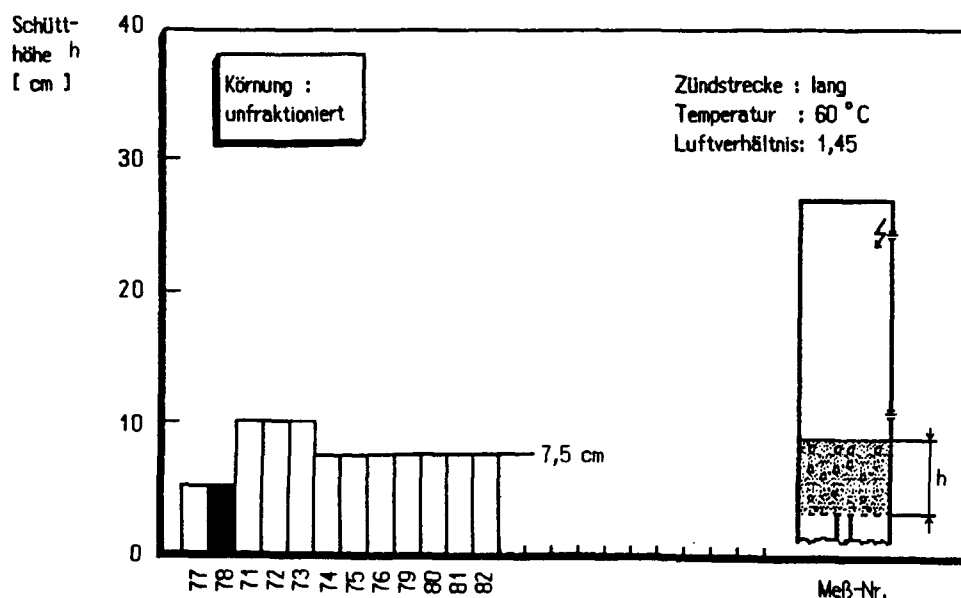


Bild 18

- kein Flammendurchschlag
- Flammendurchschlag + Deflagration
- Flammendurchschlag + Detonation

(c) Einfluß des Ortes der Zündung

Theoretische Überlegungen führen zu der Annahme, daß es nicht ohne Einfluß auf den Flammendurchschlag sein dürfte, wenn man bei gleichem Volumen der Zündstrecke den Ort der Zündung verändert. Bei einer "fernen" Zündposition schiebt die entstehende Deflagrationswelle, deren Abgas ja ein stets wachsendes Volumen einnimmt, das noch vorhandene Frischgemisch vor sich her und drückt es durch die Salzgrus-Schüttung. Dies kann einerseits die Wirkung haben, daß vom Frischgemisch das feinste Material in der Schüttung hinausgeblasen wird und durch die entstandenen Kanäle die nachfolgende Flammenfront leichter durchschlagen kann. Andererseits bewirkt das austretende Frischgemisch bei genügend großer Schütthöhe eine Verdichtung des staubförmigen Schüttmaterials, bevor die eigentliche Flammenfront auf die Oberfläche der Schüttung trifft. Hierdurch sollte sich die Sperrwirkung verbessern.

Die Versuchsergebnisse deuten darauf hin, daß Effekte der zuletzt genannten Art überwiegen. Hierzu ist zum Beispiel Bild 18 mit Bild 20 zu vergleichen. Zündet man "nah" statt "fern", so ist zur Erzielung der gewünschten Sperrwirkung die Schütthöhe des Salzgrus glatt zu verdoppeln.

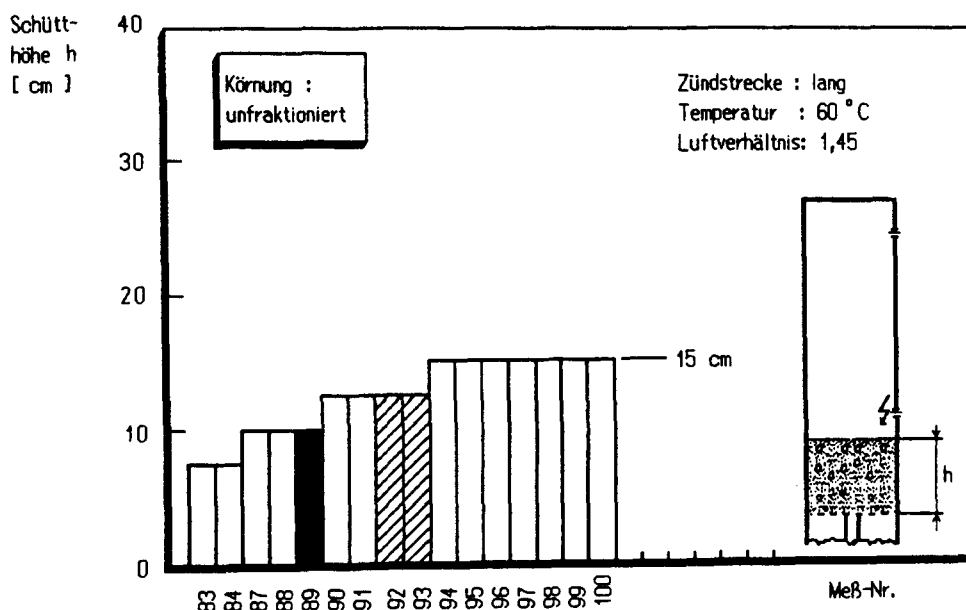


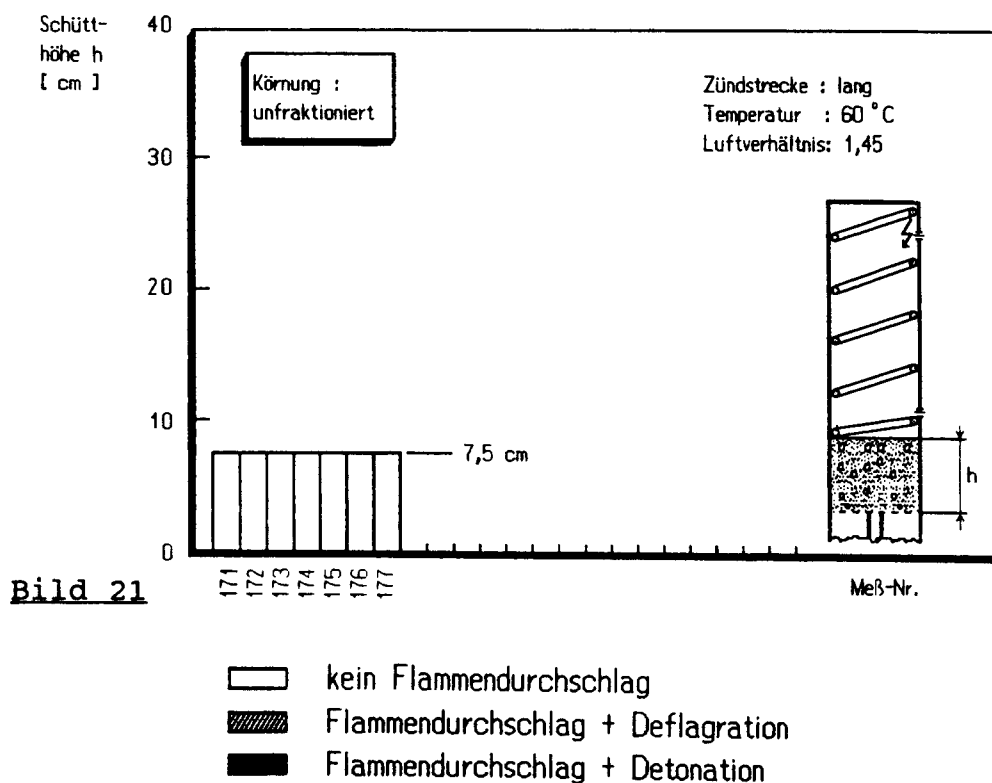
Bild 20

- kein Flammendurchschlag
- Flammendurchschlag + Deflagration
- Flammendurchschlag + Detonation

(d) Einfluß der Rauigkeit der Wandung in der Zündstrecke

Natürliche Höhlungen in den Salzgrus-Schüttungen haben keine glatten Wandungen (außer dort, wo sie gegebenenfalls an einen Behälter angrenzen). Rauhe Wandungen können in Gasströmungen Turbulenzen hervorrufen und dadurch die Flammengeschwindigkeit erhöhen. Die vorliegende Untersuchung muß dementsprechend solche Einflüsse in die Betrachtung mit einbeziehen.

Die Fragestellung lautet, ob turbulenzerzeugende Wandrauigkeiten die erforderliche Schütthöhe gegen Flammendurchschlag vergrößern. Dies wurde untersucht durch vergleichende Messungen unter gleichen Bedingungen, jedoch in einem Fall mit eingesetztem Turbulenzgenerator. Hierfür wurde eine SHELKIN-Spirale verwendet, wie sie sich für die beschleunigte Einleitung von Detonationen bewährt hat (vgl. Abschnitt 6). Die Messungen nach Bild 18 wurden mit einer solchen Spirale wiederholt, siehe Bild 21. Dabei war keinerlei Wirkung der Turbulenzzeugung festzustellen, d.h. Rauigkeitseffekte sind, wenn vorhanden, von untergeordneter Bedeutung. Der Versuch wurde bewußt mit der Zündposition "fern" durchgeführt, da dieses der kritischere Fall ist. Wie unter (c) beschrieben, muß hier das Frischgemisch teilweise unverbrannt durch die Zündstrecke strömen. Und nur wenn in einem Frishgemisch Turbulenz erzeugt wird, kann dies die Flammengeschwindigkeit steigern.



(e) Einfluß des Luftverhältnisses

Ein Vergleich von Bild 17 mit den Bildern 22 und 23 zeigt (bei "kurzer" Zündstrecke) für das Luftverhältnis $\lambda=1$ eindeutig eine Reduzierung der durchschlagsicheren Schütthöhe, für das Luftverhältnis 2 zumindest keine Erhöhung gegenüber dem Luftverhältnis 1,45.

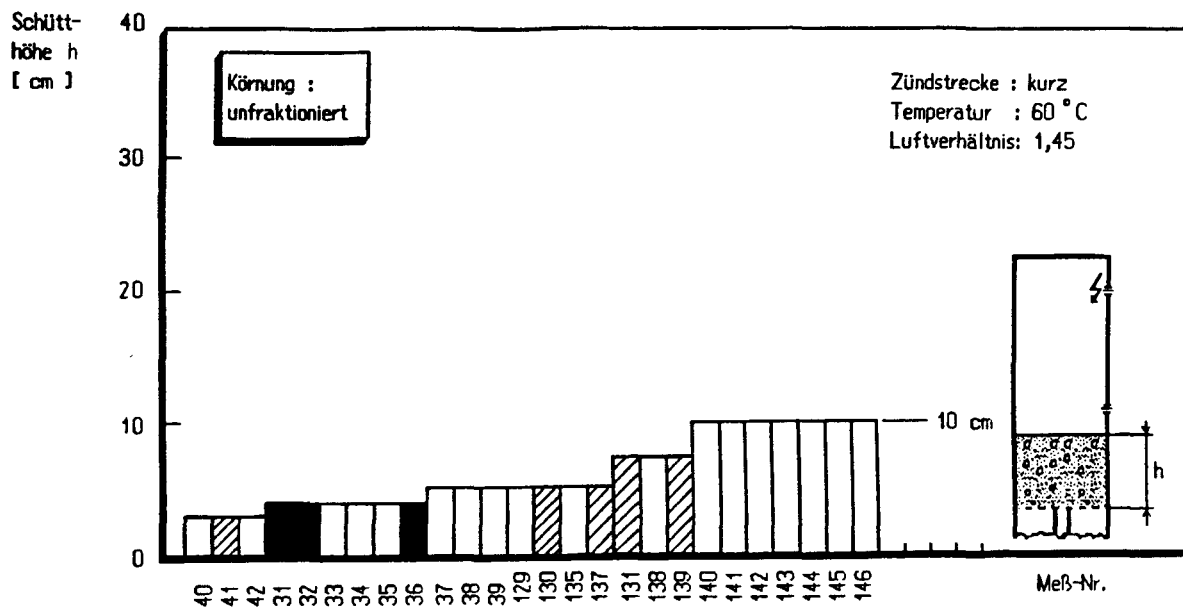


Bild 17

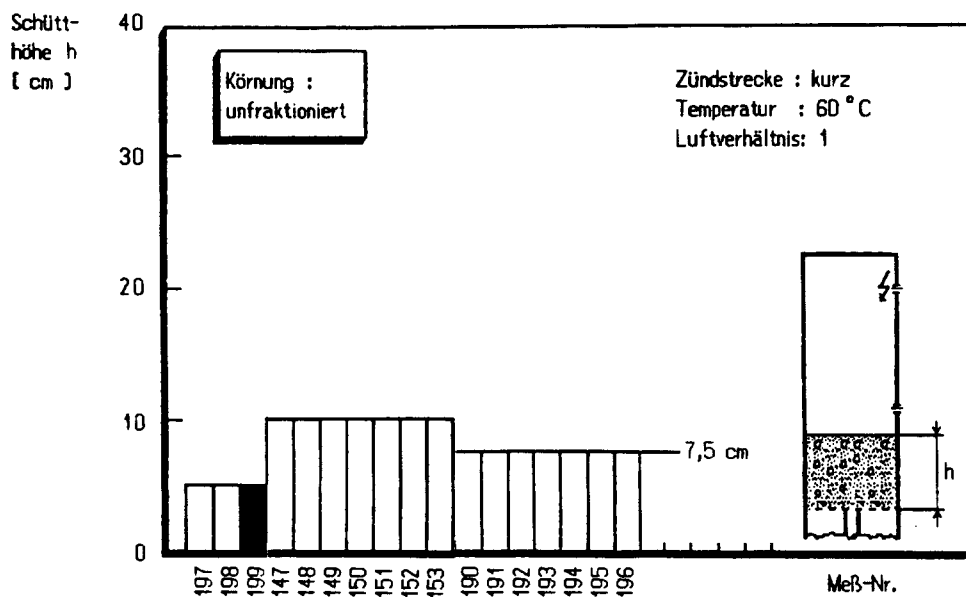


Bild 22

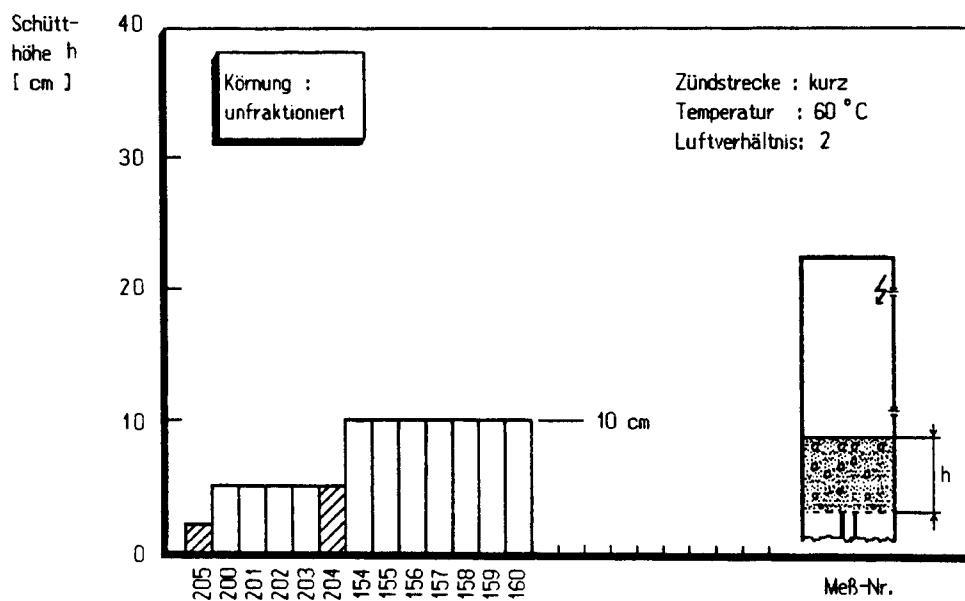


Bild 23

- kein Flammendurchschlag
- Flammendurchschlag + Deflagration
- Flammendurchschlag + Detonation

Ebenso wurden Kontrollversuche mit der langen Zündstrecke durchgeführt, die sicherstellen, daß sich die schutzbietenden Schütthöhen nicht vergrößern: Vergleiche Bild 18 mit den Bildern 24 und 25.

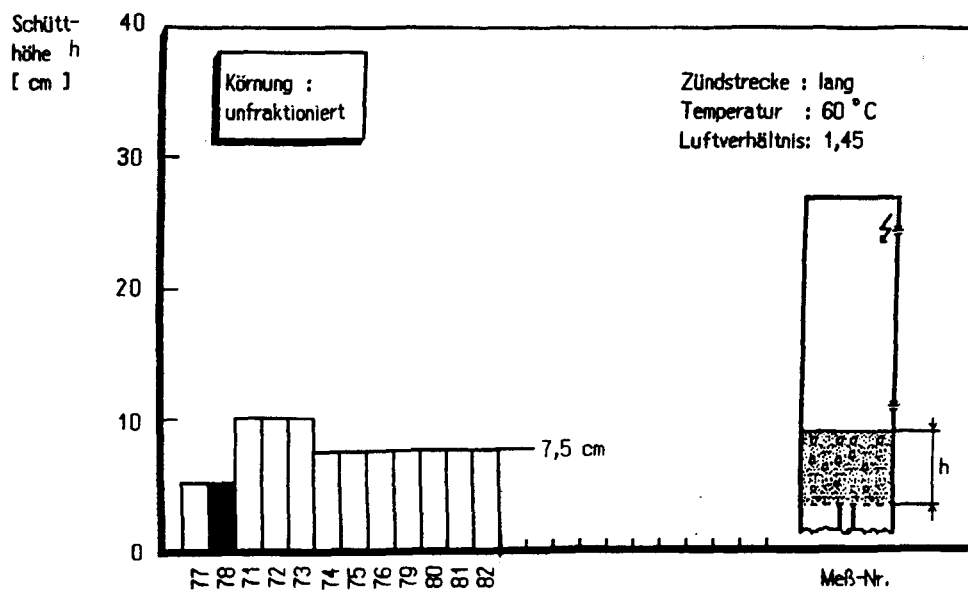


Bild 18

- ☐ kein Flammendurchschlag
- ☒ Flammendurchschlag + Deflagration
- ☒ Flammendurchschlag + Detonation

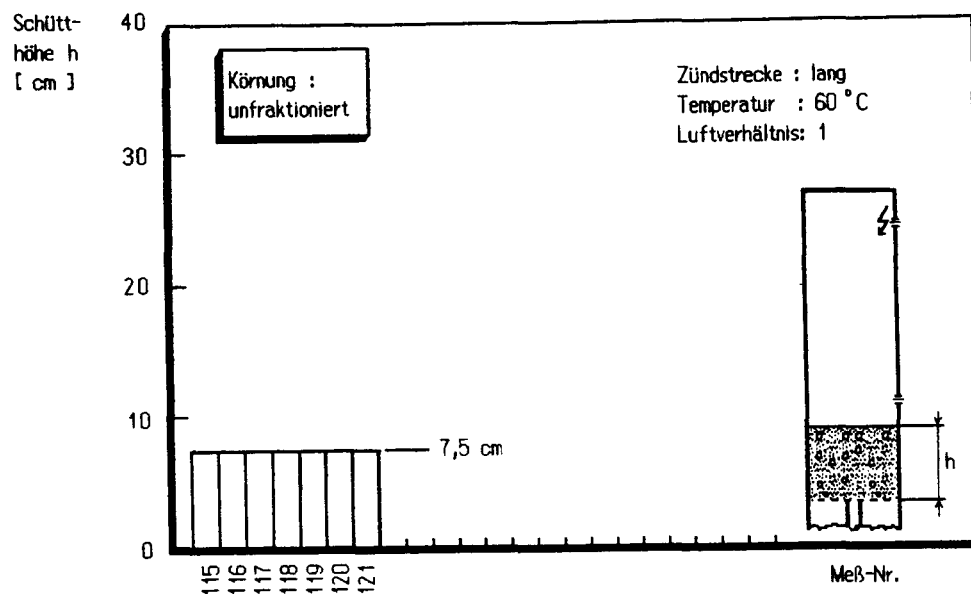


Bild 24

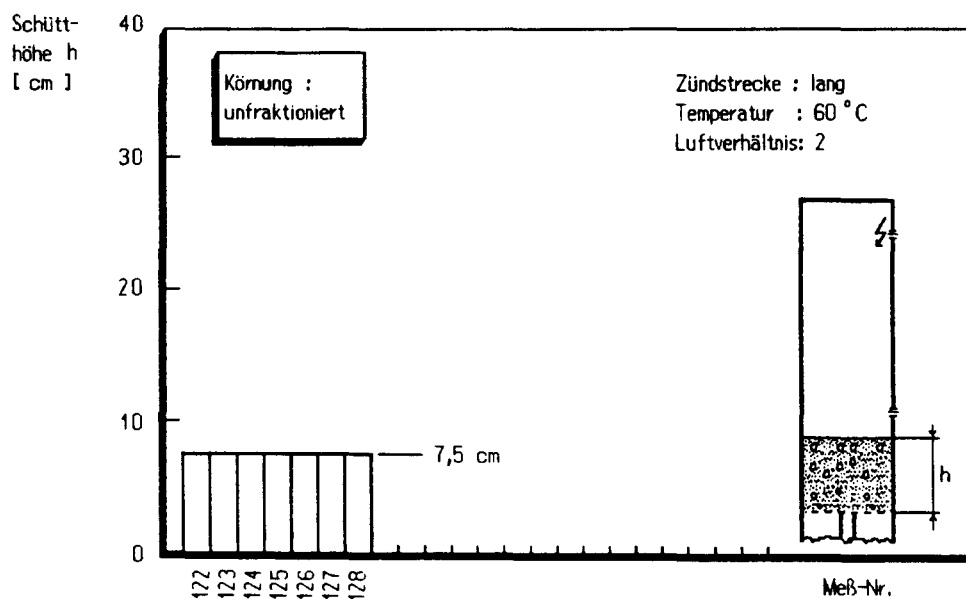





Bild 25

-  kein Flammendurchschlag
-  Flammendurchschlag + Deflagration
-  Flammendurchschlag + Detonation

Noch deutlicher wird der Einfluß des Luftverhältnisses, wenn man die Bilder 26 und 27 mit Bild 20 vergleicht (lange Zündstrecke mit der Zündposition "nah"). In Bild 26 sind die Ergebnisse für das Luftverhältnis $\lambda=2$ dargestellt, bei dem Wasserstoff-Luft-Gemische noch eine gute Zündfähigkeit aufweisen. Die Löschwirkung der Salzgrus-Schüttung ist gegenüber dem Luftverhältnis $\lambda=1,45$ stark verbessert entsprechend dem wesentlich größeren Quenching-Abstand (siehe Bild 2). Für eine Schütthöhe $h=3,5$ cm wurde Durchschlagsicherheit nachgewiesen; ein Versuch mit der Schütthöhe $h=1$ cm brachte ebenfalls keinen Flammendurchschlag (Meß-Nr. 216).

Bild 27 läßt erkennen daß man die Schütthöhe bei dem Luftverhältnis $\lambda=1$ nicht wesentlich gegenüber derjenigen bei dem Luftverhältnis $\lambda=1,45$ verringern kann, wenn eine Sperrwirkung beibehalten werden soll. Dies entspricht dem in Bild 2 gezeigten Verlauf des Löschabstands mit einem flachen Verlauf des Löschabstands über dem Luftverhältnis im Bereich 0,8 bis 1,5.

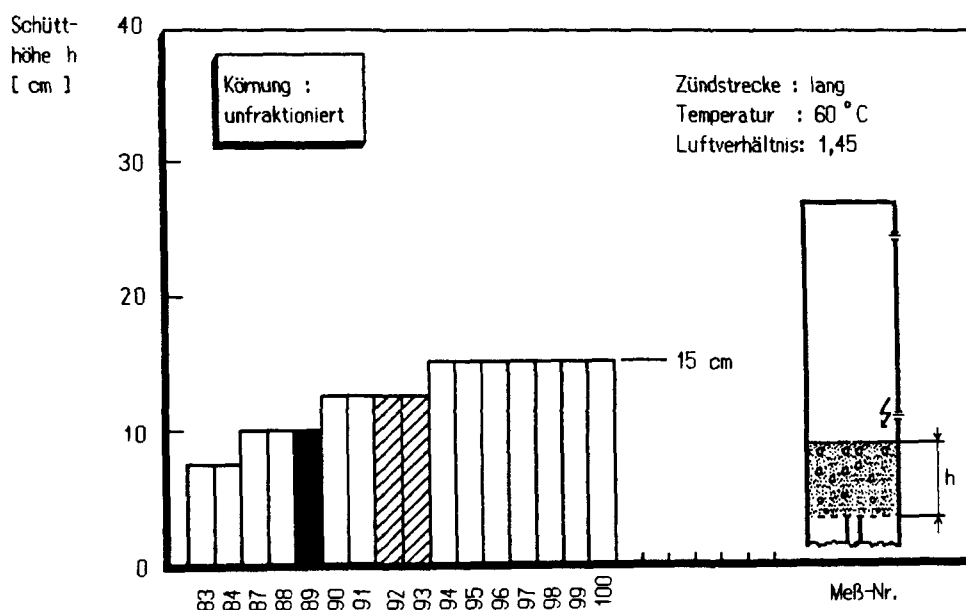


Bild 20

- kein Flammendurchschlag
- Flammendurchschlag + Deflagration
- Flammendurchschlag + Detonation

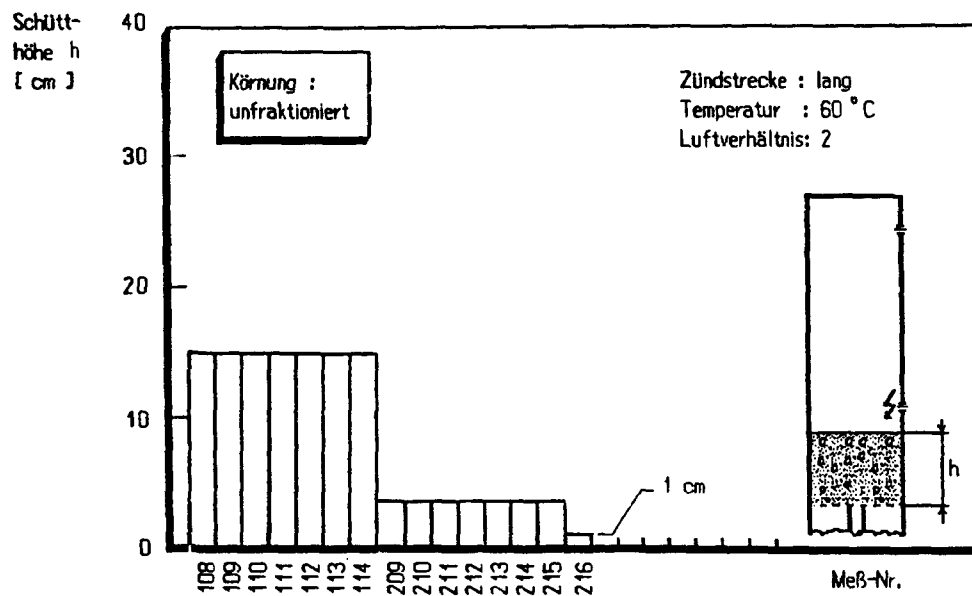


Bild 26

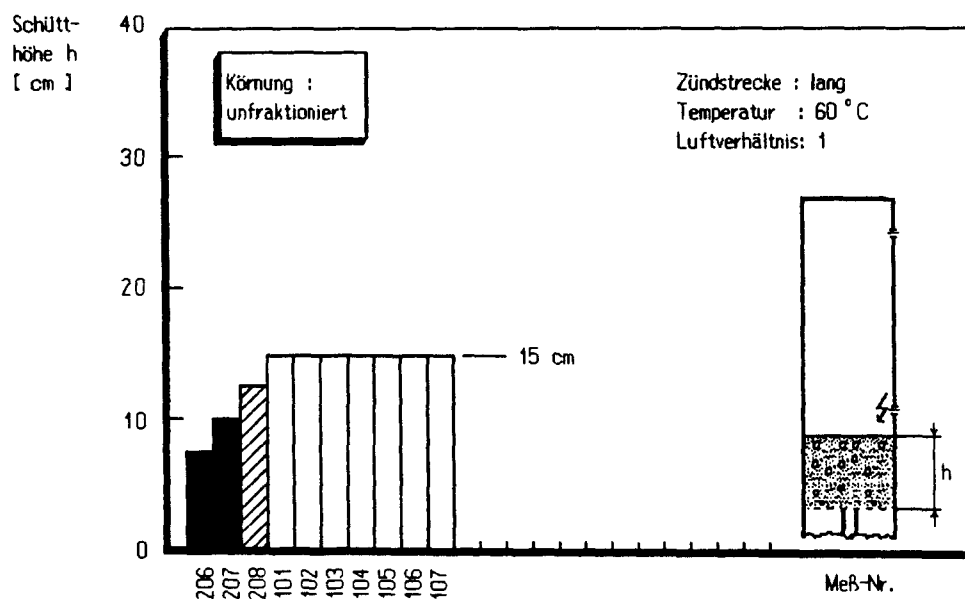


Bild 27

- kein Flammdurchschlag
- Flammdurchschlag + Deflagration
- Flammdurchschlag + Detonation

8. Zusammenfassung und Ausblick

Nach den Ergebnissen der hier besprochenen Untersuchungen ist die Unterdrückung von Verbrennungerscheinungen in Wasserstoff-Luft-Gemischen mit Hilfe von Salzgrus-Schüttungen prinzipiell möglich. Hierbei sind bestimmte Voraussetzungen zu erfüllen. Wesentlich für die Löschwirkung ist in erster Linie das Vorhandensein feinsten Materials im Salzgrus mit Abmessungen im Zehntelmillimeter-Bereich. Diese Voraussetzung wird von der Körnung 0 - 2 mm sowie vom unfraktionierten Salzgrus erfüllt. Nicht geklärt werden konnte im Rahmen der vorliegenden Arbeit die Durchschlagsicherheit von Salzgrus-Schüttungen, die von unten mit einer Flammenfront beaufschlagt werden. Weiterhin wäre es wünschenswert, Volumen und Form der Zündstrecke weitergehend zu variieren. Für die Ermittlung des Einflusses variabler Wasserstoffanteile im Frischgemisch konnten nur wenige Kontrollversuche durchgeführt werden. Hier sollte durch ergänzende Versuche mehr Klarheit über die existierenden Grenzen für den Flammendurchschlag geschaffen werden. Ebenso könnte der Einfluß einer erhöhten Feuchte des Salzgrus von Interesse sein.

9. Schrifttum

- /1/ E.BARNERT (Herausgeber)
1. Statusbericht: MAW- und HTR-BE-Versuchseinlagerung
in Bohrlöchern.
Ber.d. KFA Jülich: Jül-Conf-60
Dezember 1986
- /2/ W.BARTKNECHT
Untersuchungen über die Eignung von Schichten aus körnigem
Material zur Verhinderung der Flammenfortpflanzung bei
der Zündung explosionsfähiger Gas/Luft-Gemische.
Mitteilungen der Westfälischen Berggewerkschaftskasse,
Heft 17 (April 1960).
- /3/ B.LEWIS, G. von ELBE
Combustion, Flames and Explosions of Gases.
Academic Press, New York/San Francisco/London 1961,
pp. 229-339
- /4/ A.G. GAYDON, H.G. WOLFHARD
Flames, Their Structure, Radiation and Temperature.
London 1960.
- /5/ B.LEWIS, R.N. PEASE, H.S. TAYLOR (Editors)
Combustion Processes.
Princeton University Press,
Princeton N.J., 1956, pp. 274-300
- /6/ F. SUTTROP
Einführung in die Verbrennungstechnik.
Unveröffentlichtes Manuskript der Vorlesung "Wärmetechnik 1"
an der Fachhochschule Aachen.
Aachen, 1978

- /7/ G.S. BEZARASHVILI u.a.
Role of chemical and thermal factors in the heterogeneous inhibition of various flames.
Dokl. Akad. Nauk. SSSR 293, No. 4-6
p. 892 - 895 (April 1987)
- /8/ H.STEEN, K. SCHAMPEL
Stoffabhängigkeit der Wirkung flammendurchschlagsicherer Einrichtungen.
Fortschritt-Berichte der VDI-Zeitschriften, Reihe 6,
Nr. 122 (1983)
- /9/ W. BARTKNECHT
Explosionen, Ablauf und Schutzmaßnahmen.
Springer-Verlag, Berlin/Heidelberg/New York 1978.
- /10/ M. FUKUDA, K. KOREMATSU, M. SAKAMOTO
On quenching distance of mixtures of methane and hydrogen with air.
JSME Bulletin vol. 24, July 1981, pp. 1192 - 1197
- /11/ H. ALMSTRÖM, S. BERGLUND, M. ULLBERG
Hydrogen behaviour in the FILTRA filtered-vented containment system.
Proc. of the Workshop on the Impact of Hydrogen on Water Reactor Safety, Albuquerque, NM, Jan. 1981,
NUREG/CR-2017, SAND 81-0661-AN
- /12/ E.BARNERT
Persönliche Mitteilung (unveröffentlicht).
KFA Jülich, März 1990
- /13/ H.BEYER, R.BECK, E.W. HAAS
Rückhaltevermögen von Salzgesteinen.
KWU E 141/89/244, Oktober 1989
Abschlußbericht BMFT 02 U 5836

